- (19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro
- AIPO OMPI



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 31. Januar 2002 (31.01.2002)

**PCT** 

# (10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 02/08197 A1

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: C07D 231/44, 277/56, 207/34, 213/82, 309/30, 307/68, 333/38, 327/06, 263/34, C07C 251/48, 233/65, 211/45, 223/06, A01N 43/00

Langenfeld (DE). **KUGLER, Martin** [DE/DE]; Am Kloster 47, 42799 Leichlingen (DE). **JAETSCH, Thomas** [DE/DE]; Eintrachtstrasse 105, 50668 Köln (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/07981

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-SELLSCHAFT; 51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT,

AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR,

CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ,

LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI,

SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU,

(22) Internationales Anmeldedatum:

11. Juli 2001 (11.07.2001)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

it:

100 35 857.8 101 22 447.8 24. Juli 2000 (24.07.2000) DE 9. Mai 2001 (09.05.2001) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; 51368 Leverkusen (DE).

GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH,

(72) Erfinder; und

Veröffentlicht:

ZA, ZW.

- (75) Erfinder, und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): ELBE, Hans-Ludwig [DE/DE]; Dasnöckel 59, 42329 Wuppertal (DE). RIECK, Heiko [DE/DE]; Gudrunstrasse 4, 40764 Langenfeld (DE). DUNKEL, Ralf [DE/DE]; Krischerstrasse 22, 40789 Monheim (DE). WACHENDORFF-NEUMANN, Ulrike [DE/DE]; Oberer Markenweg 85, 56566 Neuwied (DE). MAULER-MACHNIK, Astrid [DE/DE]; Neuenkamper Weg 48, 42799 Leichlingen (DE). KUCK, Karl-Heinz [DE/DE]; Pastor-Löh-Strasse 30a, 40764
- mit internationalem Recherchenbericht
   inspesamt in elektronischer Form (mit Ausna
- insgesamt in elektronischer Form (mit Ausnahme des Kopfbogens); auf Antrag vom Internationalen Büro erhältlich

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

- (54) Title: BIPHENYL CARBOXAMIDES
- (54) Bezeichnung: BIPHENYLCARBOXAMIDE

WO 02/08197 A1

- (57) Abstract: The invention relates to novel biphenyl carboxamides of formula (I), wherein A, R, Z, X, Y, m and n have the meanings given in the description, to multiple methods for producing these substances, to their use for combating unwanted micro-organisms and to novel intermediate products and the production thereof.
- (57) Zusammenfassung: Neue Biphenylcarboxamide der Formel (I), in welcher A, R, Z, X, Y, m und n die in der Beschreibung angegebenen Bedeutungen haben, mehrere Verfahren zur Herstellung dieser Stoffe und deren Verwendung zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, sowie neue Zwischenprodukte und deren Herstellung.

## **Biphenylcarboxamide**

Die vorliegende Erfindung betrifft neue Biphenylcarboxamide, mehrere Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen.

Es ist bereits bekannt, dass zahlreiche Carboxanilide fungizide Eigenschaften besitzen (vergleiche WO 93/11 117, WO 99/09 013, WO 00/14 071, EP-A 0 545 099 und EP-A 0 589 301). Die Wirksamkeit dieser Stoffe ist gut, lässt aber in manchen Fällen zu wünschen übrig.

Es wurden nun neue Biphenylcarboxamide der Formel (I)

$$A = \begin{bmatrix} X_m \\ X_m \\ X_n \end{bmatrix}$$

$$X_m = \begin{bmatrix} X_m \\ X_m \end{bmatrix}$$

$$X_m = \begin{bmatrix} X_m \\ X_$$

15

5

10

in welcher

R für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

20

Z für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

25

X und Y unabhängig voneinander für Halogen, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-

Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkenyloxy, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkenyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Alkinyloxy, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkinyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxycarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkylsulfinyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkylsulfonyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoximino-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl stehen,

- m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,
- n für ganze Zahlen von 0 bis 4 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht,

und

15

10

5

A für einen Rest der Formel

$$R^1$$
 $N$ 
 $R^2$ 
 $R^3$ 

steht, worin

- α) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl steht und
- 25 R<sup>2</sup> für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio steht und

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 3 -

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht,

oder

5

15

20

30

β) R¹ für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C₂-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C₁-C₄-alkyl steht und

R<sup>2</sup> für Fluor steht und

R³ für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht,

oder

25 γ) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy,
C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio,
C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl,
oder Aminocarbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl steht und

R<sup>2</sup> für Fluor steht und

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, C<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht,

oder

5

15

20

25

10 A für einen Rest der Formel

R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

R<sup>6</sup> für Halogen, Cyano oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 5 -

R<sup>9</sup> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für Halogen steht,

oder

5 A für einen Rest der Formel

R<sup>10</sup> für Wasserstoff, Halogen, Hydroxy, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

10

20

25

15 A für einen Rest der Formel

R<sup>11</sup> für Halogen, Hydroxy, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

R<sup>12</sup> für Wasserstoff, Halogen, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfinyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl steht,

oder

-6-

A für einen Rest der Formel

$$R^{14}$$
  $O$   $R^{13}$ 

steht, worin

5  $R^{13}$  für  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

 $R^{14}$  für  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl steht,

10 X<sup>1</sup> für ein Schwefelatom, für SO, SO<sub>2</sub> oder CH<sub>2</sub> steht,

p für 0, 1 oder 2 steht,

oder

15

25

A für einen Rest der Formel

steht, worin

 $R^{15}$  für  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

R<sup>16</sup> für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

5 oder

#### A für einen Rest der Formel

steht, worin

10 R<sup>17</sup> für Halogen, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

 $R^{18}$  für Wasserstoff, Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht.

15

20

25

R<sup>19</sup> für Wasserstoff, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, Hydroxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, Di(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)aminosulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylcarbonyl oder für gegebenenfalls substituiertes Phenylsulfonyl oder Benzoyl steht,

oder

#### A für einen Rest der Formel

 $R^{20}$  und  $R^{21}$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Amino,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

5

R<sup>22</sup> für Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

10

A für einen Rest der Formel

steht, worin

15

 $R^{23}$  und  $R^{24}$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Amino, Nitro,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

R<sup>25</sup> für Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

20

oder

A für einen Rest der Formel

R<sup>26</sup> für Wasserstoff, Halogen, Amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)amino, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

5 R<sup>27</sup> für Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

10 A für einen Rest der Formel

R<sup>28</sup> für Wasserstoff, Halogen, Amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)amino, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

R<sup>29</sup> für Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

20 oder

15

A für einen Rest der Formel

25 R<sup>30</sup> für Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

5

R<sup>31</sup> für Wasserstoff oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl steht und

 $\mathbb{R}^{32}$ 

für Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl steht,

10

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

15

R<sup>33</sup> für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

20

A für einen Rest der Formel

steht, worin

R<sup>34</sup> für Wasserstoff, Halogen oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl steht,

25 gefunden.

Weiterhin wurde gefunden, dass man Biphenylcarboxamide der Formel (I) erhält, indem man

### 5 a) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

$$\bigcap_{\mathsf{A} \subseteq \mathsf{G}} (\mathsf{II})$$

in welcher

10 A die oben angegebenen Bedeutungen hat und

G für Halogen, Hydroxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxy steht,

mit Anilin-Derivaten der Formel (III)

15

$$H_2N$$
 $N$ 
 $Z$ 
(III)

in welcher

R, Z, X, Y, m und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 12 -

oder

5

## b) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

$$A = \begin{bmatrix} A & A & A \\ A & A \\ A & A \end{bmatrix}$$

$$(IV)$$

in welcher

A, X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)

$$G^{1}O \longrightarrow G^{2}$$

$$V \longrightarrow V \longrightarrow V$$

$$R$$

$$(V)$$

in welcher

15 R, Z, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben und

 $G^1$  und  $G^2$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

# c) Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)

$$A \xrightarrow{N} H \xrightarrow{K} X_m$$

$$G^1O \xrightarrow{B} OG^2$$
(VI)

5 in welcher

A, X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben und

 $G^1$  und  $G^2$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

in welcher

R, Z, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

20

d) Biphenylacyl-Derivate der Formel (VIII)

$$A = X_{m}$$

$$Y_{n} = R$$

$$(VIII)$$

in welcher

5

15

20

A, R, X, Y, m und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Alkoxaminen der Formel (IX)

$$Z-O-NH_2 \times HCI$$
 (IX)

in welcher Z die oben angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

e) Hydroxylamin-Derivate der Formel (I-a)

- 15 -

$$A \longrightarrow X_m$$
 $Y_n \longrightarrow R$ 
OH
(I-a)

in welcher

A, R, X, Y, m und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

5

mit Verbindungen der Formel (X)

$$Z^{1}-E$$
 (X)

in welcher

10

- $Z^1$  für  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl steht und
- E für Chlor, Brom, Iod, Methansulfonyl oder p-Toluolsulfonyl steht,

15 oder

Z<sup>1</sup> und E zusammen für (Di-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl)sulfat stehen,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

f) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

20

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 16 -

$$A = \begin{bmatrix} Br \\ X_m \end{bmatrix}$$
 (IV)

in welcher

A, X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben,

5

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

$$\begin{array}{cccc}
& & & & & & & & \\
& & & & & & & \\
Y_n & & & & & & \\
\end{array}$$
(VII)

in welcher

10

R, Z, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

15

in Gegenwart eines Palladium- oder Platin-Katalysators und in Gegenwart von 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

Schließlich wurde gefunden, dass die neuen Biphenylcarboxamide der Formel (I) sehr gute mikrobizide Eigenschaften besitzen und zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen sowohl im Pflanzenschutz als auch im Materialschutz verwendbar sind.

20

25

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen Biphenylcarboxamide der Formel (I) eine wesentlich bessere fungizide Wirksamkeit als die konstitutionell ähnlichsten, vorbekannten Wirkstoffe gleicher Wirkungsrichtung.

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

- 17 -

Die erfindungsgemäßen Biphenylcarboxamide sind durch die Formel (I) allgemein definiert.

- 5 R steht <u>bevorzugt</u> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen.
  - Z steht <u>bevorzugt</u> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen.

X und Y stehen unabhängig voneinander <u>bevorzugt</u> für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyloxy, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkenyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Alkinyloxy, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkinyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxycarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylsulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkylsulfinyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylsulfonyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoximino-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl.

- m steht <u>bevorzugt</u> für ganze Zahlen von 0 bis 3, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht.
- n steht <u>bevorzugt</u> für ganze Zahlen von 0 bis 4, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht.
- A steht bevorzugt für einen Rest der Formel

25

10

WO 02/08197

10

15

- 18 -

PCT/EP01/07981

$$\mathbb{R}^{1}$$
 $\mathbb{R}^{2}$ 
 $\mathbb{R}^{3}$ 
, worin

α) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio oder Ethylthio steht und

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht,

oder

20 β) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Ethyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluor-methylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

R<sup>2</sup> für Fluor steht und

WO 02/08197 PCT/EP01/07981

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht,

5

oder

- γ) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder
   Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,
- 15 R<sup>2</sup> für Fluor steht und
  - R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht.

20

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{5}$$
  $R^{6}$  , woring

- 25
- $R^4$  und  $R^5$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder  $C_1$ - $C_2$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlorund/oder Bromatomen stehen und
- R<sup>6</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^7$$
  $\mathbb{R}^9$  , worin

5 R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor-und/oder Bromatomen stehen und

R<sup>9</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

10

15

25

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

R<sup>10</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

20 A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{12}$$
 , woring

R<sup>11</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio,

15

Trifluormethylthio, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

R<sup>12</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkylsulfonyl steht.

10 A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{14}$$
 , woring  $R^{13}$ 

R<sup>13</sup> für Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

R<sup>14</sup> für Methyl oder Ethyl steht,

X<sup>1</sup> für ein Schwefelatom, für SO, SO<sub>2</sub> oder CH<sub>2</sub> steht und

20 p für 0, 1 oder 2 steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

25 R<sup>15</sup> für Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

10

15

20

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

R<sup>16</sup> für Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{18}$$
 $N$ 
 $R^{18}$ 
 $N$ 
 $R^{19}$ 
, worin

R<sup>17</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl, Isopropyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

R<sup>18</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

R<sup>19</sup> Wasserstoff, Methyl, Ethyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Methylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

15

$$R^{20}$$
 , woring

R<sup>20</sup> und R<sup>21</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R<sup>22</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

10 A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{24}$$
 $R^{25}$ 
, worin

R<sup>23</sup> und R<sup>24</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Nitro, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R<sup>25</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.

20 A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

- R<sup>26</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)amino, Cyano, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und
- 5 R<sup>27</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.
  - A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{28}$$
  $\mathbb{R}^{29}$  , worin

R<sup>28</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)amino, Cyano, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

15

- R<sup>29</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.
- A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

20

- R<sup>30</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht.
- A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

WO 02/08197

$$\mathbb{R}^{31}$$
 , worin

R<sup>31</sup> für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und

5 R<sup>32</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{33}$$
 , woring

10 R<sup>33</sup> für Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor-und/oder Bromatomen steht.

A steht außerdem bevorzugt für einen Rest der Formel

15

R<sup>34</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

- R steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl.
- $20 \hspace{1cm} Z \hspace{1cm} \text{steht} \hspace{0.1cm} \underline{besonders} \hspace{0.1cm} \underline{bevorzugt} \hspace{0.1cm} \text{für Wasserstoff, $C_1$-$C_4$-Alkyl.}$ 
  - X und Y stehen unabhängig voneinander <u>besonders bevorzugt</u> für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, sek.-Butyl, i-Butyl, tert.-Butyl, Trichlormethyl, Trifluormethyl,

Difluormethyl, Difluorchlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Allyloxy, Propargyloxy, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methoximinomethyl, Ethoximinomethyl, Methoximinoethyl oder Ethoximinoethyl.

- m steht <u>besonders bevorzugt</u> für ganze Zahlen von 0 bis 3, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht.
- n steht <u>besonders bevorzugt</u> für die Zahlen 0 bis 4, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht.
  - A steht besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{1}$$
 $\mathbb{N}$ 
 $\mathbb{R}^{2}$ 
 $\mathbb{R}^{3}$ 
, worin

15

20

5

- α) R¹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und
  - R<sup>2</sup> für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio oder Ethylthio steht und
- 25 R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht,

oder

20

25

- β) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Ethyl, Isopropyl, Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und
  - R<sup>2</sup> für Fluor steht und
- 10 R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht,

oder

15 γ) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl,
Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl,
Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethoxy,
Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und

R<sup>2</sup> für Fluor steht und

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{5}$$
  $R^{6}$  , woring

- R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und
- 5 R<sup>6</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluorchlormethoxy oder Trichlormethoxy steht.
  - A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^7$$
  $\mathbb{R}^9$  , worin

- R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und
- 15 R<sup>9</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.
  - A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{10}$$
 , worin

20

R<sup>10</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluorchlormethoxy, Trichlormethoxy, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Difluorchlormethylthio oder Trichlormethylthio steht.

25

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

25

$$R^{12}$$
  $N$   $R^{11}$  , worin

R<sup>11</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl, Trichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluormethoxy oder Trichlormethoxy steht und

10 R<sup>12</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl, Trichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylsulfinyl oder Methylsulfonyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{14}$$
 , worin

20 R<sup>13</sup> für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht und

R<sup>14</sup> für Methyl oder Ethyl steht,

X<sup>1</sup> für ein Schwefelatom, für SO, SO<sub>2</sub> oder CH<sub>2</sub> steht und

p für 0, 1 oder 2 steht.

20

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

5 R<sup>15</sup> für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

10 R<sup>16</sup> für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

R<sup>17</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl, Isopropyl, Trifluor-methyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

R<sup>18</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl,
Difluormethyl oder Trichlormethyl steht und

R<sup>19</sup> Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Hydroxymethyl oder Hydroxyethyl steht.

20

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$R^{20}$$
 $R^{20}$ 
 $R^{20}$ , worin

R<sup>20</sup> und R<sup>21</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und

R<sup>22</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{24}$$
  $\mathbb{R}^{25}$  , woring

15 R<sup>23</sup> und R<sup>24</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und

R<sup>25</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

R<sup>26</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methylamino, Dimethylamino, Cyano, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht und

PCT/EP01/07981

- 5 R<sup>27</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht.
  - A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{28}$$
  $\mathbb{R}^{29}$  , woring

10

WO 02/08197

R<sup>28</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methylamino, Dimethylamino, Cyano, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht und

15

- R<sup>29</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.
- A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

20

- R<sup>30</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht.
- A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

15

20

$$\mathbb{R}^{31}$$
, woring

R<sup>31</sup> für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und

5 R<sup>32</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{33}$$
 , woring

R<sup>33</sup> für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht.

A steht außerdem besonders bevorzugt für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^{34}$$
 , worin

R<sup>34</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

Bevorzugt oder besonders bevorzugt sind Verbindungen, welche die unter bevorzugt oder besonders bevorzugt genannten Substituenten tragen.

Gesättigte oder ungesättigte Kohlenwasserstoffreste wie Alkyl oder Alkenyl können, auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie z.B. in Alkoxy, soweit möglich, jeweils geradkettig oder verzweigt sein.

Gegebenenfalls substituierte Reste können einfach oder mehrfach substituiert sein, wobei bei Mehrfachsubstitutionen die Substituenten gleich oder verschieden sein können. Mehrere Reste mit denselben Indizes wie beispielsweise m Reste X für m >1, können gleich oder verschieden sein.

5

Durch Halogen substituierte Reste, wie z.B. Halogenalkyl, sind einfach oder mehrfach halogeniert. Bei mehrfacher Halogenierung können die Halogenatome gleich oder verschieden sein. Halogen steht dabei für Fluor, Chlor, Brom und Iod, insbesondere für Fluor, Chlor und Brom.

10

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restedefinitionen bzw. Erläuterungen können jedoch auch untereinander, also zwischen den jeweiligen Bereichen und Vorzugsbereichen beliebig kombiniert werden. Sie gelten für die Endprodukte sowie für die Vor- und Zwischenprodukte entsprechend. Außerdem können auch einzelne Definitionen entfallen.

15

Verwendet man 2-Methyl-4-trifluormethyl-1,3-thiazol-5-carbonsäurechlorid und 2-(4-Methoximinomethyl-phenyl)-anilin als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

20

25

Verwendet man 1,3-Dimethylpyrrol-4-carbonsäure-(2-brom)-anilid und 4-Methoximinoethyl-phenyl-boronsäure als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

5

Verwendet man 2-[(1,4-Dimethylpyrrol-3-yl)carbonylamino]phenyl-boronsäure und 1-Brom-4-methoximinoethyl-benzol als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

10

15

Verwendet man 1-Methyl-3-trifluormethylpyrazol-4-carbonsäure-[2-(4-acetyl-phenyl)-4-fluor]-anilid und Methoxaminhydrochlorid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

- 36 -

$$F_3C$$
 $+$ 
 $H_3C-O-NH_2$ 
 $+$ 
 $\times$ 
 $+$ 

Verwendet man 1,3-Dimethylpyrazol-4-carbonsäure-[2-(4-hydroximinoethyl)-phenyl]-anilid und Methylbromid als Ausgangsstoffe, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

$$H_3C$$
 $H_3C$ 
 $H_3C$ 

Verwendet man 5-Fluorthiazol-4-carbonsäure-(2-brom)-anilid und 1-Brom-4-methoximinomethyl-benzol als Ausgangsstoffe sowie einen Katalysator und 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, so kann der Verlauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (f) durch das folgende Formelschema veranschaulicht werden.

5

#### Erläuterung der Verfahren und Zwischenprodukte

15

20

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Ausgangsstoffe benötigten Carbonsäure-Derivate sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel steht A vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden. G steht bevorzugt für Chlor, Brom, Hydroxy, Methoxy oder Ethoxy, besonders bevorzugt für Chlor, Hydroxy oder Methoxy.

Die Carbonsäure-Derivate der Formel (II) sind bekannt oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vgl. WO 93/11 117, EP-A 0 545 099, EP-A 0 589 301 und EP-A 0 589 313).

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) als Reaktionskomponenten benötigten Anilin-Derivate sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel haben R, Z, X, Y, m und n vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden.

Die Anilin-Derivate der Formel (III) sind neu. Sie lassen sich teilweise nach bekannten Methoden herstellen (vgl. EP-A 0 545 099 und EP-A 0 589 301).

Man erhält Anilin-Derivate der Formel (III) außerdem, indem man

# 5 g) 2-Halogenanilin-Derivate der allgemeinen Formel (XI)

in welcher

10 X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Hal für Halogen steht,

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)

15

in welcher

R, Z, Y, n, G<sup>1</sup> und G<sup>2</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt

PCT/EP01/07981

- 39 -

oder

# h) Anilinboronsäuren der Formel (XII)

$$NH_2$$
 (XII)

5

in welcher

X, m, G<sup>1</sup> und G<sup>2</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben

10 mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

$$P_{n}$$
 $P_{n}$ 
 $P_{n$ 

in welcher

15

R, Z, Y und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

20

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (g) als Reaktionskomponenten benötigten 2-Halogenanilin-Derivate sind durch die Formel (XI) allgemein definiert. In dieser Formel haben X und m vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die

- 40 -

PCT/EP01/07981

bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden. Hal steht vorzugsweise für Fluor, Chlor oder Brom, besonders bevorzugt für Chlor oder Brom.

5

10

15

20

WO 02/08197

Die 2-Halogenanilin-Derivate der Formel (XI) sind kommerziell erhältlich oder lassen sich aus den entsprechenden Nitroverbindungen durch Reduktion herstellen.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (h) als Reaktionskomponenten benötigten Anilinboronsäuren sind durch die Formel (XII) allgemein definiert. In dieser Formel haben X und m vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden. G<sup>1</sup> und G<sup>2</sup> stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

Die Anilinboronsäuren der Formel (XII) sind kommerziell erhältlich.

Die bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (b) und (f) als Ausgangsstoffe benötigten Carboxamid-Derivate sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel stehen A, X und m vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

25

30

Die Carboxamid-Derivate der Formel (IV) sind bekannt oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vgl. WO 91/01311, EP-A 0 371 950).

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) sowie des Verfahrens (g) zur Herstellung der Reaktionskomponenten benötigten Boronsäure-Derivate sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel haben R, Z, Y und n

vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden.  $G^1$  und  $G^2$  stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

5

Die Boronsäure-Derivate der Formel (V) sind neu und lassen sich herstellen, indem man

# i) Phenylboronsäuren der Formel (XIII)

10

$$G^{1}O$$
 $G^{2}O$ 
 $Y_{n}$ 
(XIIII)

in welcher

 $R, Y, n, G^1$  und  $G^2$  die oben angegebenen Bedeutungen haben,

15

mit Alkoxaminen der Formel (IX)

$$Z-O-NH_2 \times HCI$$
 (IX)

20

in welcher

Z die oben angegebenen Bedeutungen hat,

25

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (i) als Reaktionskomponenten benötigten Phenylboronsäuren sind durch die Formel (XIII) allgemein definiert. In dieser Formel haben R, Y und n vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diese Reste bzw. diese Indices genannt wurden. G<sup>1</sup> und G<sup>2</sup> stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

Die Phenylboronsäuren der Formel (XIII) sind kommerziell erhältlich.

10

15

20

5

Die bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (c) als Reaktionskomponenten benötigten Carboxamid-Boronsäure-Derivate sind durch die Formel (VI) allgemein definiert. In dieser Formel stehen A, X und m, vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden. G<sup>1</sup> und G<sup>2</sup> stehen bevorzugt jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen.

Die Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI) sind neu. Sie lassen sich herstellen, indem man

# j) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)



25 in welcher

A und G die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Anilinboronsäuren der Formel (XII)

- 43 -

$$X_m$$
 $NH_2$ 
 $(XII)$ 

in welcher

X, m, G<sup>1</sup> und G<sup>2</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,

5

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

Die bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (c) und (f) sowie des Verfahrens (h) als Reaktionskomponenten benötigten Phenyloxim-Derivate sind durch die Formel (VII) allgemein definiert. In dieser Formel stehen R, Z, Y und n vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

Die Phenyloxim-Derivate der Formel (VII) sind bekannt oder lassen sich nach bekannten Verfahren herstellen (vgl. Synth. Commun. 2000, 30, 665-669, Synth. Commun. 1999, 29, 1697-1701).

20

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) als Ausgangsstoffe benötigten Biphenylacyl-Derivate sind durch die Formel (VIII) allgemein definiert. In dieser Formel stehen A, R, X, Y, m und n für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

25

Die Biphenylacyl-Derivate der Formel (VIII) sind neu. Sie lassen sich herstellen, indem man

k) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

5 in welcher

A und G die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit 2-Benzaldehyd-anilin-Derivaten der Formel (XIV)

10

$$H_2N$$
 $X_m$ 
 $Y_n$ 
 $Y_n$ 

in welcher

R, X, Y, m und n die oben angegebenen Bedeutungen haben,

15

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umsetzt.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (k) als Reaktionskomponenten benötigten 2-Benzaldehyd-anilin-Derivate sind durch die Formel (XIV)
allgemein definiert. In dieser Formel stehen R, X, Y, m und n vorzugsweise für
diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders
bevorzugt genannt wurden.

Die 2-Benzaldehyd-anilin-Derivate der Formel (XIV) sind neu. Sie lassen sich herstellen, indem man

# 5 l) Anilin-Derivate der Formel (XI)

in welcher

10 X und m die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Hal für Halogen steht,

mit Phenylboronsäure-Derivaten der Formel (XIII)

15

$$G^{1}O$$
 $G^{2}O$ 
 $Y_{n}$ 
 $(XIII)$ 

in welcher

R, Y, n, G<sup>1</sup> und G<sup>2</sup> die oben angegebenen Bedeutungen haben,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umsetzt.

- 46 -

Die bei der Durchführung des Verfahrens (I) als Reaktionskomponenten benötigten Anilin-Derivate der Formel (XI) wurden bereits bei der Beschreibung des Verfahrens (g) beschrieben.

Die bei der Durchführung des Verfahrens (1) als Reaktionskomponenten benötigten Phenylboronsäure-Derivate der Formel (XIII) wurden bereits bei der Beschreibung des Verfahrens (i) beschrieben.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) sowie des Verfahrens (i) als Reaktionskomponenten benötigten Alkoxamine sind durch die Formel (IX) allgemein definiert. In dieser Formel hat Z vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) bevorzugt bzw. besonders bevorzugt für diesen Rest genannt wurden. Bevorzugt werden die in der Beschreibung angegebenen Hydrochloride eingesetzt. Es können aber auch die freien Alkoxamine in dem erfindungsgemäßen Verfahren verwendet werden.

Die Alkoxamine der Formel (IX) sind kommerziell erhältlich.

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) als Ausgangsstoffe benötigten Hydroxylamin-Derivate sind durch die Formel (I-a) allgemein definiert. In dieser Formel steht A, R, X, Y, m und n vorzugsweise für diejenigen Bedeutungen, die bereits in Zusammenhang mit der Beschreibung der erfindungsgemäßen Stoffe der Formel (I) für diese Reste als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannt wurden.

Die erfindungsgemäßen Hydroxylamin-Derivate der Formel (I-a) lassen sich nach einem der oben beschriebenen erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d) oder (f) herstellen.

10

15

5

10

15

20

25

30

- 47 -

PCT/EP01/07981

Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) als Reaktionskomponenten benötigten Verbindungen sind durch die Formel (X) allgemein definiert. In dieser Formel steht  $Z^1$  bevorzugt für  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl, besonders bevorzugt für Methyl oder Ethyl. E steht bevorzugt für Chlor, Brom, Iod, Methansulfonyl oder p-Toluolsulfonyl. E steht besonders bevorzugt für Chlor oder Brom.

Die Verbindungen der Formel (X) sind kommerziell erhältlich.

Als Säurebindemittel kommen bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) jeweils alle für derartige Reaktionen üblichen anorganischen und organischen Basen in Betracht. Vorzugsweise verwendbar sind Erdoder Alkalimetallhydroxide, wie Natriumhydroxid, Calciumhydroxid, Kaliumhydroxid, oder auch Ammoniumhydroxid, Alkalimetallcarbonate, wie Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Kaliumhydrogencarbonat, Natriumhydrogencarbonat, Alkali- oder Erdalkalimetallacetate wie Natriumacetat, Kaliumacetat, Calciumacetat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N.N-Dimethylanilin. Pyridin, N-Methylpiperidin, N.N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU). Es ist jedoch auch möglich, ohne zusätzliches Säurebindemittel zu arbeiten, oder die Aminkomponente in einem Überschuss einzusetzen, so dass sie gleichzeitig als Säurebindemittel fungiert.

Als Verdünnungsmittel kommen bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) jeweils alle üblichen inerten, organischen Solventien in Frage. Vorzugsweise verwendbar sind gegebenenfalls halogenierte aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Dichlormethan, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlorethan oder Trichlorethan; Ether, wie Diethylether, Diisopropylether, Methyl-t-butylether, Methyl-t-amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan oder Anisol; Nitrile, wie Acetonitril, Propionitril, n- oder i-Butyronitril oder

- 48 -

PCT/EP01/07981

Benzonitril; Amide, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; Ester wie Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, Sulfoxide, wie Dimethylsulfoxid oder Sulfone, wie Sulfolan.

5

WO 02/08197

Die Reaktionstemperaturen können bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) jeweils in einem größeren Bereich variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen 0°C und 140°C, vorzugsweise zwischen 10°C und 120°C.

10

Bei der Durchführung der erfindungsgemäßen Verfahren (a), (b), (c), (d), (e) und (f) arbeitet man im allgemeinen jeweils unter Atmosphärendruck. Es ist aber auch möglich, jeweils unter erhöhtem oder vermindertem Druck zu arbeiten.

15

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (a) setzt man auf 1 Mol an Säurehalogenid der Formel (II) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Anilin-Derivat der Formel (III) sowie 1 bis 3 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, die organische Phase abtrennt und nach dem Trocknen unter vermindertem Druck einengt. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

25

30

20

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (b) setzt man auf 1 Mol an Carboxamid der Formel (IV) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Boronsäure-Derivat der Formel (V) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Nieder-

- 49 -

PCT/EP01/07981

schlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (c) setzt man auf 1 Mol an Carboxamid-Boronsäure-Derivat der Formel (VI) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Phenyloxim-Derivat der Formel (VII) sowie 1 bis 10 Mol an Säurebindemittel und 0.5 bis 5 Molprozent eines Katalysators ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Niederschlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

15

20

25

30

10

5

WO 02/08197

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (d) setzt man auf 1 Mol an Biphenylacyl-Derivat der Formel (VIII) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Alkoxamin der Formel (IX) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Niederschlag abtrennt, mit Wasser und Diisopropylether wäscht und anschließend trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (e) setzt man auf 1 Mol an Hydroxylamin-Derivat der Formel (I-a) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Reagenz der Formel (X) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt

man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Niederschlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

5

10

15

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (f) setzt man auf 1 Mol an Carboxamid-Derivat der Formel (IV) im allgemeinen 1 Mol oder auch einen Überschuss an Phenyloxim-Derivat der Formel (VII) sowie 1 bis 5 Mol an Säurebindemittel ein, sowie 1 bis 5 Mol eines Katalysators. Es ist jedoch auch möglich, die Reaktionskomponenten in anderen Verhältnissen einzusetzen. Die Aufarbeitung erfolgt nach üblichen Methoden. Im allgemeinen verfährt man in der Weise, dass man das Reaktionsgemisch mit Wasser versetzt, den Niederschlag abtrennt und trocknet. Der verbleibende Rückstand kann gegebenenfalls nach üblichen Methoden, wie Chromatographie oder Umkristallisation, von eventuell noch vorhandenen Verunreinigungen befreit werden.

Die erfindungsgemäßen Stoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen, wie Fungi und Bakterien, im Pflanzenschutz und im Materialschutz eingesetzt werden.

20

Fungizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Plasmodiophoromycetes, Oomycetes, Chytridiomycetes, Zygomycetes, Ascomycetes, Basidiomycetes und Deuteromycetes einsetzen.

25

Bakterizide lassen sich im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae einsetzen.

30

Beispielhaft aber nicht begrenzend seien einige Erreger von pilzlichen und bakteriellen Erkrankungen, die unter die oben aufgezählten Oberbegriffe fallen, genannt:

Xanthomonas-Arten, wie beispielsweise Xanthomonas campestris pv. oryzae; Pseudomonas-Arten, wie beispielsweise Pseudomonas syringae pv. lachrymans; Erwinia-Arten, wie beispielsweise Erwinia amylovora;

- 5 Pythium-Arten, wie beispielsweise Pythium ultimum;
  - Phytophthora-Arten, wie beispielsweise Phytophthora infestans;

Pseudoperonospora-Arten, wie beispielsweise Pseudoperonospora humuli oder

Pseudoperonospora cubensis;

Plasmopara-Arten, wie beispielsweise Plasmopara viticola;

- Bremia-Arten, wie beispielsweise Bremia lactucae;
  - Peronospora-Arten, wie beispielsweise Peronospora pisi oder P. brassicae;

Erysiphe-Arten, wie beispielsweise Erysiphe graminis;

Sphaerotheca-Arten, wie beispielsweise Sphaerotheca fuliginea;

Podosphaera-Arten, wie beispielsweise Podosphaera leucotricha;

- Venturia-Arten, wie beispielsweise Venturia inaequalis;
  - Pyrenophora-Arten, wie beispielsweise Pyrenophora teres oder P. graminea

(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);

Cochliobolus-Arten, wie beispielsweise Cochliobolus sativus

(Konidienform: Drechslera, Syn: Helminthosporium);

20 Uromyces-Arten, wie beispielsweise Uromyces appendiculatus;

Puccinia-Arten, wie beispielsweise Puccinia recondita;

Sclerotinia-Arten, wie beispielsweise Sclerotinia sclerotiorum;

Tilletia-Arten, wie beispielsweise Tilletia caries;

Ustilago-Arten, wie beispielsweise Ustilago nuda oder Ustilago avenae;

- 25 Pellicularia-Arten, wie beispielsweise Pellicularia sasakii;
  - Pyricularia-Arten, wie beispielsweise Pyricularia oryzae:

Fusarium-Arten, wie beispielsweise Fusarium culmorum;

Botrytis-Arten, wie beispielsweise Botrytis cinerea;

Septoria-Arten, wie beispielsweise Septoria nodorum;

- 30 Leptosphaeria-Arten, wie beispielsweise Leptosphaeria nodorum;
  - Cercospora-Arten, wie beispielsweise Cercospora canescens;

5

10

15

20

25

30

- 52 -

PCT/EP01/07981

Alternaria-Arten, wie beispielsweise Alternaria brassicae;

Pseudocercosporella-Arten, wie beispielsweise Pseudocercosporella herpotrichoides.

Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

Dabei lassen sich die erfindungsgemäßen Wirkstoffe mit besonders gutem Erfolg zur Bekämpfung von Krankheiten im Wein-, Obst- und Gemüseanbau einsetzen, wie beispielsweise gegen Venturia-, Botrytis-, Sclerotinia-, Rhizoctonia-, Uncinula-, Sphaerotheca-, Podosphaera-, Alternaria- und Colletotrichum-Arten. Mit gutem Erfolg werden auch Reiskrankheiten, wie Pyricularia- und Pellicularia-Arten, bekämpft.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich auch zur Steigerung des Ernteertrages. Sie sind außerdem mindertoxisch und weisen eine gute Pflanzenverträglichkeit auf.

Erfindungsgemäß können alle Pflanzen und Pflanzenteile behandelt werden. Unter Pflanzen werden hierbei alle Pflanzen und Pflanzenpopulationen verstanden, wie erwünschte und unerwünschte Wildpflanzen oder Kulturpflanzen (einschließlich natürlich vorkommender Kulturpflanzen). Kulturpflanzen können Pflanzen sein, die durch konventionelle Züchtungs- und Optimierungsmethoden oder durch biotechnologische und gentechnologische Methoden oder Kombinationen dieser Methoden erhalten werden können, einschließlich der transgenen Pflanzen und einschließlich der durch Sortenschutzrechte schützbaren oder nicht schützbaren Pflanzensorten. Unter Pflanzenteilen sollen alle oberirdischen und unterirdischen Teile und Organe der Pflanzen, wie Spross, Blatt, Blüte und Wurzel verstanden werden, wobei beispielhaft Blätter, Nadeln, Stengel, Stämme, Blüten, Fruchtkörper, Früchte und Samen sowie Wurzeln, Knollen und Rhizome aufgeführt werden. Zu den Pflanzenteilen gehört auch Erntegut sowie vegetatives und generatives Vermehrungsmaterial, beispielsweise Stecklinge, Knollen, Rhizome, Ableger und Samen.

Im Materialschutz lassen sich die erfindungsgemäßen Stoffe zum Schutz von technischen Materialien gegen Befall und Zerstörung durch unerwünschte Mikroorganismen einsetzen.

5 Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nichtlebende Materialien zu verstehen, die für die Verwendung in der Technik zubereitet worden sind. Beispielsweise können technische Materialien, die durch erfindungsgemäße Wirkstoffe vor mikrobieller Veränderung oder Zerstörung geschützt werden sollen, Klebstoffe, Leime, Papier und Karton, Textilien, Leder, Holz, Anstrichmittel und 10 Kunststoffartikel, Kühlschmierstoffe und andere Materialien sein, die von Mikroorganismen befallen oder zersetzt werden können. Im Rahmen der zu schützenden Materialien seien auch Teile von Produktionsanlagen, beispielsweise Kühlwasserkreisläufe, genannt, die durch Vermehrung von Mikroorganismen beeinträchtigt werden können. Im Rahmen der vorliegenden Erfindung seien als technische Mate-15 rialien vorzugsweise Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone, Leder, Holz, Anstrichmittel, Kühlschmiermittel und Wärmeübertragungsflüssigkeiten genannt, besonders bevorzugt Holz.

Als Mikroorganismen, die einen Abbau oder eine Veränderung der technischen Materialien bewirken können, seien beispielsweise Bakterien, Pilze, Hefen, Algen und Schleimorganismen genannt. Vorzugsweise wirken die erfindungsgemäßen Wirkstoffe gegen Pilze, insbesondere Schimmelpilze, holzverfärbende und holzzerstörende Pilze (Basidiomyceten) sowie gegen Schleimorganismen und Algen.

25 Es seien beispielsweise Mikroorganismen der folgenden Gattungen genannt:

Alternaria, wie Alternaria tenuis,

Aspergillus, wie Aspergillus niger,

Chaetomium, wie Chaetomium globosum,

Coniophora, wie Coniophora puetana,

30 Lentinus, wie Lentinus tigrinus,

20

Penicillium, wie Penicillium glaucum,

5

10

15

20

25

30

Polyporus, wie Polyporus versicolor,
Aureobasidium, wie Aureobasidium pullulans,
Sclerophoma, wie Sclerophoma pityophila,
Trichoderma, wie Trichoderma viride,
Escherichia, wie Escherichia coli,
Pseudomonas, wie Pseudomonas aeruginosa,

Staphylococcus, wie Staphylococcus aureus.

Die Wirkstoffe können in Abhängigkeit von ihren jeweiligen physikalischen und/oder chemischen Eigenschaften in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

- 54 -

PCT/EP01/07981

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol oder Alkylnaphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Ether und Ester, Ketone, wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser. Mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgase, wie Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid. Als feste Trägerstoffe kommen in

5

10

15

30

Frage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate. Als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnussschalen, Maiskolben und Tabakstängel. Als Emulgier und/oder schaumerzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäureester, Polyoxyethylen-Fettalkoholether, z.B. Alkylarylpolyglycolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate. Als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulverige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine, und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

- Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe, wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.
- Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können als solche oder in ihren Formulierungen auch in Mischung mit bekannten Fungiziden, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden oder Insektiziden verwendet werden, um so z.B. das Wirkungsspektrum zu verbreitern oder Resistenzentwicklungen vorzubeugen. In vielen Fällen erhält man dabei

- 56 -

synergistische Effekte, d.h. die Wirksamkeit der Mischung ist größer als die Wirksamkeit der Einzelkomponenten.

Als Mischpartner kommen zum Beispiel folgende Verbindungen in Frage:

5

10

### Fungizide:

Aldimorph, Ampropylfos, Ampropylfos-Kalium, Andoprim, Anilazin, Azaconazol, Azoxystrobin,

Benalaxyl, Benodanil, Benomyl, Benzamacril, Benzamacryl-isobutyl, Bialaphos, Binapacryl, Biphenyl, Bitertanol, Blasticidin-S, Bromuconazol, Bupirimat, Buthiobat,

Calciumpolysulfid, Capsimycin, Captafol, Captan, Carbendazim, Carboxin, Carvon, Chinomethionat (Quinomethionat), Chlobenthiazon, Chlorfenazol, Chloroneb, Chloropicrin, Chlorothalonil, Chlozolinat, Clozylacon, Cufraneb, Cymoxanil,

15 Cyproconazol, Cyprodinil, Cyprofuram,

Debacarb, Dichlorophen, Diclobutrazol, Diclofluanid, Diclomezin, Dicloran, Diethofencarb, Difenoconazol, Dimethirimol, Dimethomorph, Diniconazol, Diniconazol-M, Dinocap, Diphenylamin, Dipyrithione, Ditalimfos, Dithianon, Dodemorph, Dodine, Drazoxolon,

20 Ediphenphos, Epoxiconazol, Etaconazol, Ethirimol, Etridiazol,

Famoxadon, Fenapanil, Fenarimol, Fenbuconazol, Fenfuram, Fenitropan, Fenpiclonil, Fenpropidin, Fenpropimorph, Fentinacetat, Fentinhydroxyd, Ferbam, Ferimzon, Fluazinam, Flumetover, Fluoromid, Fluquinconazol, Flurprimidol, Flusilazol, Flusulfamid, Flutolanil, Flutriafol, Folpet, Fosetyl-Alminium, Fosetyl-

Natrium, Fthalid, Fuberidazol, Furalaxyl, Furametpyr, Furcarbonil, Furconazol, Furconazol-cis, Furmecyclox,

Guazatin,

30

Hexachlorobenzol, Hexaconazol, Hymexazol,

Imazalil, Imibenconazol, Iminoctadin, Iminoctadinealbesilat, Iminoctadinetriacetat, Iodocarb, Ipconazol, Iprobenfos (IBP), Iprodione, Irumamycin, Isoprothiolan, Isovaledione,

Kasugamycin, Kresoxim-methyl, Kupfer-Zubereitungen, wie: Kupferhydroxid, Kupfernaphthenat, Kupferoxychlorid, Kupfersulfat, Kupferoxid, Oxin-Kupfer und Bordeaux-Mischung,

Mancopper, Mancozeb, Maneb, Meferimzone, Mepanipyrim, Mepronil, Metalaxyl,

- Metconazol, Methasulfocarb, Methfuroxam, Metiram, Metomeclam, Metsulfovax, Mildiomycin, Myclobutanil, Myclozolin,
  - Nickel-dimethyldithiocarbamat, Nitrothal-isopropyl, Nuarimol,
  - Ofurace, Oxadixyl, Oxamocarb, Oxolinicacid, Oxycarboxim, Oxyfenthiin,
  - Paclobutrazol, Pefurazoat, Penconazol, Pencycuron, Phosdiphen, Pimaricin,
- Piperalin, Polyoxin, Polyoxorim, Probenazol, Prochloraz, Procymidon, Propamocarb, Propanosine-Natrium, Propiconazol, Propineb, Pyrazophos, Pyrifenox, Pyrimethanil, Pyroquilon, Pyroxyfur,
  - Quinconazol, Quintozen (PCNB), Quinoxyfen,
  - Schwefel und Schwefel-Zubereitungen,
- Tebuconazol, Tecloftalam, Tecnazen, Tetcyclacis, Tetraconazol, Thiabendazol, Thicyofen, Thifluzamide, Thiophanate-methyl, Thiram, Tioxymid, Tolclofos-methyl, Tolylfluanid, Triadimefon, Triadimenol, Triazbutil, Triazoxid, Trichlamid, Tricyclazol, Tridemorph, Triflumizol, Triforin, Triticonazol, Uniconazol,
- 20 Validamycin A, Vinclozolin, Viniconazol,

Zarilamid, Zineb, Ziram sowie

Dagger G,

OK-8705,

OK-8801,

- 25  $\alpha$ -(1,1-Dimethylethyl)- $\beta$ -(2-phenoxyethyl)-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
  - $\alpha$ -(2,4-Dichlorphenyl)- $\beta$ -fluor- $\beta$ -propyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
  - $\alpha$ -(2.4-Dichlorphenyl)- $\beta$ -methoxy- $\alpha$ -methyl-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
  - $\alpha$ -(5-Methyl-1,3-dioxan-5-yl)- $\beta$ -[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methylen]-1H-1,2,4-triazol-1-ethanol,
- (5RS,6RS)-6-Hydroxy-2,2,7,7-tetramethyl-5-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-3-octanon,
   (E)-α-(Methoxyimino)-N-methyl-2-phenoxy-phenylacetamid,

```
{2-Methyl-1-[[[1-(4-methylphenyl)-ethyl]-amino]-carbonyl]-propyl}-carbaminsäure-1-isopropylester,
```

- 58 -

- 1-(2,4-Dichlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-ethanon-O-(phenylmethyl)-oxim,
- 1-(2-Methyl-1-naphthalenyl)-1H-pyrrol-2,5-dion,
- 5 1-(3,5-Dichlorphenyl)-3-(2-propenyl)-2,5-pyrrolidindion,
  - 1-[(Diiodmethyl)-sulfonyl]-4-methyl-benzol,
  - 1-[[2-(2,4-Dichlorphenyl)-1,3-dioxolan-2-yl]-methyl]-1H-imidazol,
  - 1-[[2-(4-Chlorphenyl)-3-phenyloxiranyl]-methyl]-1H-1,2,4-triazol,
  - 1-[1-[2-[(2,4-Dichlorphenyl)-methoxy]-phenyl]-ethenyl]-1H-imidazol,
- 10 1-Methyl-5-nonyl-2-(phenylmethyl)-3-pyrrolidinol,
  - 2',6'-Dibrom-2-methyl-4'-trifluormethoxy-4'-trifluor-methyl-1,3-thiazol-5-carboxanilid,
  - 2,2-Dichlor-N-[1-(4-chlorphenyl)-ethyl]-1-ethyl-3-methyl-cyclopropancarboxamid,
  - 2,6-Dichlor-5-(methylthio)-4-pyrimidinyl-thiocyanat,
- 15 2,6-Dichlor-N-(4-trifluormethylbenzyl)-benzamid,
  - 2,6-Dichlor-N-[[4-(trifluormethyl)-phenyl]-methyl]-benzamid,
  - 2-(2,3,3-Triiod-2-propenyl)-2H-tetrazol,
  - 2-[(1-Methylethyl)-sulfonyl]-5-(trichlormethyl)-1,3,4-thiadiazol,
  - 2-[[6-Deoxy-4-O-(4-O-methyl-ß-D-glycopyranosyl)-a-D-glucopyranosyl]-amino]-4-
- 20 methoxy-1H-pyrrolo[2,3-d]pyrimidin-5-carbonitril,
  - 2-Aminobutan,
  - 2-Brom-2-(brommethyl)-pentandinitril,
  - 2-Chlor-N-(2,3-dihydro-1,1,3-trimethyl-1H-inden-4-yl)-3-pyridincarboxamid,
  - 2-Chlor-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(isothiocyanatomethyl)-acetamid,
- 25 2-Phenylphenol(OPP),
  - 3,4-Dichlor-1-[4-(difluormethoxy)-phenyl]-1H-pyrrol-2,5-dion,
  - 3,5-Dichlor-N-[cyan[(1-methyl-2-propynyl)-oxy]-methyl]-benzamid,
  - 3-(1,1-Dimethylpropyl-1-oxo-1H-inden-2-carbonitril,
  - 3-[2-(4-Chlorphenyl)-5-ethoxy-3-isoxazolidinyl]-pyridin,
- 30 4-Chlor-2-cyan-N,N-dimethyl-5-(4-methylphenyl)-1H-imidazol-1-sulfonamid,
  - 4-Methyl-tetrazolo[1,5-a]quinazolin-5(4H)-on,

- 8-(1,1-Dimethylethyl)-N-ethyl-N-propyl-1,4-dioxaspiro[4.5]decan-2-methanamin, 8-Hydroxychinolinsulfat,
- 9H-Xanthen-9-carbonsäure-2-[(phenylamino)-carbonyl]-hydrazid,
- bis-(1-Methylethyl)-3-methyl-4-[(3-methylbenzoyl)-oxy]-2,5-thiophendicarboxylat,
- 5 cis-1-(4-Chlorphenyl)-2-(1H-1,2,4-triazol-1-yl)-cycloheptanol,
  - cis-4-[3-[4-(1,1-Dimethylpropyl)-phenyl-2-methylpropyl]-2,6-dimethyl-morpholinhydrochlorid,
  - Ethyl-[(4-chlorphenyl)-azo]-cyanoacetat,
  - Kaliumhydrogencarbonat,
- 10 Methantetrathiol-Natriumsalz,
  - Methyl-1-(2,3-dihydro-2,2-dimethyl-1H-inden-1-yl)-1H-imidazol-5-carboxylat,
  - Methyl-N-(2,6-dimethylphenyl)-N-(5-isoxazolylcarbonyl)-DL-alaninat,
  - Methyl-N-(chloracetyl)-N-(2,6-dimethylphenyl)-DL-alaninat,
  - N-(2,3-Dichlor-4-hydroxyphenyl)-1-methyl-cyclohexancarboxamid.
- N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-furanyl)-acetamid,
  - N-(2,6-Dimethylphenyl)-2-methoxy-N-(tetrahydro-2-oxo-3-thienyl)-acetamid,
  - N-(2-Chlor-4-nitrophenyl)-4-methyl-3-nitro-benzolsulfonamid,
  - N-(4-Cyclohexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,
  - N-(4-Hexylphenyl)-1,4,5,6-tetrahydro-2-pyrimidinamin,
- 20 N-(5-Chlor-2-methylphenyl)-2-methoxy-N-(2-oxo-3-oxazolidinyl)-acetamid,
  - N-(6-Methoxy)-3-pyridinyl)-cyclopropancarboxamid,
  - N-[2,2,2-Trichlor-1-[(chloracetyl)-amino]-ethyl]-benzamid,
  - N-[3-Chlor-4,5-bis-(2-propinyloxy)-phenyl]-N'-methoxy-methanimidamid,
  - N-Formyl-N-hydroxy-DL-alanin-Natriumsalz,
- 25 O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat,
  - O-Methyl-S-phenyl-phenylpropylphosphoramidothioate,
  - S-Methyl-1,2,3-benzothiadiazol-7-carbothioat,
  - spiro[2H]-1-Benzopyran-2,1'(3'H)-isobenzofuran]-3'-on,

#### Bakterizide:

Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin, Octhilinon, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

5

#### Insektizide / Akarizide / Nematizide:

Abamectin, Acephat, Acetamiprid, Acrinathrin, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb, Alpha-cypermethrin, Alphamethrin, Amitraz, Avermectin, AZ 60541, Azadirachtin, Azamethiphos, Azinphos A, Azinphos M, Azocyclotin,

- Bacillus popilliae, Bacillus sphaericus, Bacillus subtilis, Bacillus thuringiensis, Baculoviren, Beauveria bassiana, Beauveria tenella, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Benzoximate, Betacyfluthrin, Bifenazate, Bifenthrin, Bioethanomethrin, Biopermethrin, BPMC, Bromophos A, Bufencarb, Buprofezin, Butathiofos, Butocarboxim, Butylpyridaben,
- 15 Cadusafos, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cartap, Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron, Chlormephos, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos M, Chlovaphorthrin, Cis-Resmethrin, Cispermethrin, Clocythrin, Cloethocarb, Clofentezine, Cyanophos, Cycloprene, Cycloprothrin, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyromazin,
- Deltamethrin, Demeton M, Demeton S, Demeton-S-methyl, Diafenthiuron, Diazinon, Dichlorvos, Diflubenzuron, Dimethoat, Dimethylvinphos, Diofenolan, Disulfoton, Docusat-sodium, Dofenapyn,
  - Elfusilanate, Emamectin, Empenthrin, Endosulfan, Entomopfthora spp., Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazole, Etrimphos, Fenazaguin, Fenbutatinoxide, Fenitrothion, Fenothiocarb, Fenoxacrim,
- Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatinoxide, Fenitrothion, Fenothiocarb, Fenoxacrim, Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyrithrin, Fenpyroximate, Fenvalerate, Fipronil, Fluazinam, Fluazuron, Flubrocythrinate, Flucycloxuron, Flucythrinate, Flufenoxuron, Flutenzine, Fluvalinate, Fonophos, Fosmethilan, Fosthiazate, Fubfenprox, Furathiocarb,
- Granuloseviren,Halofenozide, HCH, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydroprene,

- 61 -

Imidacloprid, Isazophos, Isofenphos, Isoxathion, Ivermectin,

Kempolyederviren,

Lamda-cyhalothrin, Lufenuron,

Malathion, Mecarbam, Metaldehyd, Methamidophos, Metharhizium anisopliae,

Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Methoxyfenozide, 5 Metolcarb, Metoxadiazone, Mevinphos, Milbemectin, Monocrotophos,

Naled, Nitenpyram, Nithiazine, Novaluron,

Omethoat, Oxamyl, Oxydemethon M,

Paecilomyces fumosoroseus, Parathion A, Parathion M, Permethrin, Phenthoat,

10 Phorat. Phosalon, Phosmet, Phosphamidon, Phoxim, Pirimicarb, Pirimiphos A, Pirimiphos M, Profenophos, Promecarb, Propoxur, Prothiophos, Prothoat, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridathion, Pymetrozine, Pyraclofos, Pyrimidifen, Pyriproxifen,

Quinalphos,

15 Ribavirin.

20

Salithion, Sebufos, Silafluofen, Spinosad, Sulfotep, Sulprofos,

Tau-fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimiphos, Teflubenzuron, Temivinphos, Terbufos. Tetrachlorvinphos, Tefluthrin. Temephos, Thetacypermethrin, Thiamethoxam, Thiapronil, Thiatriphos, Thiocyclam hydrogen Tralocythrin, Tralomethrin, Thiodicarb, Thiofanox, Thuringiensin, oxalate, Triarathene, Triazamate, Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon, Triflumuron, Trimethacarb,

Vamidothion, Vaniliprole, Verticillium lecanii

YI 5302

25 Zeta-Cypermethrin, Zolaprofos

(1R-cis)-[5-(Phenylmethyl)-3-furanyl]-methyl-3-[(dihydro-2-oxo-3(2H)-

furanyliden)-methyl]-2,2-dimethylcyclopropancarboxylat,

(3-Phenoxyphenyl)-methyl-2,2,3,3-tetramethylcyclopropanecarboxylat,

1-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]tetrahydro-3,5-dimethyl-N-nitro-1,3,5-triazin-2(1H)-30 imin,

- 62 -

PCT/EP01/07981

2-(2-Chlor-6-fluorphenyl)-4-[4-(1,1-diemthylethyl)phenyl]-4,5-dihydro-oxazol,

2-(Acetlyoxy)-3-docecyl-1,4-naphthalinidion,

2-Chlor-N-[[[4-(1-phenylethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid,

2-Chlor-N-[[[4-(2,2-dichlor-1,1-difluorethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid,

5 3-Methylphenyl-propylcarbamat,

4-[4-(4-Ethoxyphenyl)-4-methylpentyl]-1-fluor-2-phenoxy-benzol,

4-Chlor-2-(1,1-dimethylethyl)-5-[[2-(2,6-dimethyl-4-phenoxyphenoxy)ethyl]thio]-3(2H)-pyridazinon,

4-Chlor-2-(2-chlor-2-methylpropyl)-5-[(6-iod-3-pyridinyl)methoxy]-3(2H)-

10 pyridazinon,

WO 02/08197

4-Chlor-5[(6-chlor-3-pyridinyl)methoxy]-2-(3,4-dichlorphenyl)-3(2H)-pyridazinon, Bacillus thuringiensis strain EG-2348,

Benzoesäure (2-benzoyl-1-(1,1-dimethylethyl)-hydrazid,

Butan 2,2-dimethyl-3-(2,4-dichlorphenyl)-2-oxo-1-oxaspiro[4.5]dec-3-en-4-yl-ester,

15 [3-[(6-Chlor-3-pyridinyl)methyl]-2-thiazolidinyliden]-cyanamid,

Dihydro-2-(nitromethylen)-2H-1,3-thiazine-3(4H)-carboxaldehyd,

Ethyl-[2-[[1,6-dihydro-6-oxo-1-(phenylmethyl)-4-pyridazinyl]oxy]ethyl]-carbamat, N-(3,4,4-Trifluor-1-oxo-3-butenyl)-glycin,

N-(4-Chlorphenyl)-3-[4-Difluormethoxy)phenyl]-4,5-dihydro-4-phenyl-1H-pyrazol-

20 1-carboxamid,

N-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]-N'-methyl-N"-nitro-guanidin,

N-Methyl-N'-(1-methyl-2-propenyl)-1,2-hydrazindicarbothioamid,

N-Methyl-N'-2-propenyl-1,2-hydrazindicarbothioamid,

O.O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat.

25

30

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren ist möglich.

Darüber hinaus weisen die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) auch sehr gute antimykotische Wirkungen auf. Sie besitzen ein sehr breites antimy-

- 63 -

kotisches Wirkungsspektrum, insbesondere gegen Dermatophyten und Sproßpilze, Schimmel und diphasische Pilze,

z.B. gegen Candida-Spezies wie Candida albicans, Candida glabrata, Epidermophyton-Spezies wie Epidermophyton floccosum, Aspergillus-Spezies wie Aspergillus niger und Aspergillus fumigatus, Trichophyton-Spezies wie Trichophyton mentagrophytes, Microsporon-Spezies wie Microsporon canis und audouinii.

Die Aufzählung dieser Pilze stellt keinesfalls eine Beschränkung des erfaßbaren mykotischen Spektrums dar, sondern hat nur erläuternden Charakter.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder den daraus bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Suspensionen, Spritzpulver, Pasten, lösliche Pulver, Stäubemittel und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Verspritzen, Versprühen, Verstreuen, Verstäuben, Verschäumen, Bestreichen usw. Es ist ferner möglich, die Wirkstoffe nach dem Ultra-Low-Volume-Verfahren auszubringen oder die Wirkstoffzubereitung oder den Wirkstoff selbst in den Boden zu injizieren. Es kann auch das Saatgut der Pflanzen behandelt werden.

20

15

5

Beim Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe als Fungizide können die Aufwandmengen je nach Applikationsart innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Bei der Behandlung von Pflanzenteilen liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10 000 g/ha, vorzugsweise zwischen 10 und 1 000 g/ha. Bei der Saatgutbehandlung liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,001 und 50 g pro Kilogramm Saatgut, vorzugsweise zwischen 0,01 und 10 g pro Kilogramm Saatgut. Bei der Behandlung des Bodens liegen die Aufwandmengen an Wirkstoff im allgemeinen zwischen 0,1 und 10 000 g/ha, vorzugsweise zwischen 1 und 5 000 g/ha.

25

PCT/EP01/07981

- 64 -

Die zum Schutz technischer Materialien verwendeten Mittel enthalten die Wirkstoffe im allgemeinen in einer Menge von 1 bis 95 %, bevorzugt von 10 bis 75 %.

Die Anwendungskonzentrationen der erfindungsgemäßen Wirkstoffe richten sich nach der Art und dem Vorkommen der zu bekämpfenden Mikroorganismen sowie nach der Zusammensetzung des zu schützenden Materials. Die optimale Einsatzmenge kann durch Testreihen ermittelt werden. Im allgemeinen liegen die Anwendungskonzentrationen im Bereich von 0,001 bis 5 Gew.-%, vorzugsweise von 0,05 bis 1,0 Gew.-% bezogen auf das zu schützende Material.

10

15

5

Die Wirksamkeit und das Wirkungsspektrum der erfindungsgemäß im Materialschutz zu verwendenden Wirkstoffe bzw. der daraus herstellbaren Mittel, Konzentrate oder ganz allgemein Formulierungen kann erhöht werden, wenn gegebenenfalls weitere antimikrobiell wirksame Verbindungen, Fungizide, Bakterizide, Herbizide, Insektizide oder andere Wirkstoffe zur Vergrößerung des Wirkungsspektrums oder Erzielung besonderer Effekte wie z.B. dem zusätzlichen Schutz vor Insekten zugesetzt werden. Diese Mischungen können ein breiteres Wirkungsspektrum besitzen als die erfindungsgemäßen Verbindungen.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geht aus den folgenden Beispielen hervor.

- 65 -

### Herstellungsbeispiele

### **Beispiel 1**

### 5 Verfahren (a):

Eine Lösung von 0,59 g (0,0026 Mol) 2-(4-Methoximinomethyl-phenyl)-anilin in 25 mL Toluol wird bei Raumtemperatur mit 0,26 g (0,0026 Mol) Triethylamin versetzt. In dieses Gemisch lässt man bei Raumtemperatur unter Rühren eine Lösung von 0,6 g (0,0026 Mol) 2-Methyl-4-trifluormethylthiazol-5-carbonsäurechlorid in 5 mL Toluol einlaufen. Nach beendeter Zugabe wird das Reaktionsgemisch auf 50°C erwärmt und 2 h bei dieser Temperatur weiter gerührt. Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch auf Raumtemperatur abgekühlt und mit Wasser versetzt. Die organische Phase wird abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet, filtriert und unter vermindertem Druck eingeengt. Der verbleibende Rückstand wird mit Cyclohexan: Essigsäureethylester = 3:1 als Laufmittel an Kieselgel chromatographiert. Nach dem Einengen des Eluates erhält man 0,81 g (74% der Theorie) an 2-Methyl-4-trifluormethylthiazol-5-carbonsäure-[2-(4-methoximinomethyl-phenyl)]-anilid als Festsubstanz vom Schmelzpunkt 122 bis 123°C.

10

15

- 66 -

#### Herstellung von Ausgangssubstanzen

5

10

15

Ein Gemisch aus 2,9 g (0,017 Mol) 2-Bromanilin, 0,68 g Tetrakis-(triphenylphosphin) palladium, 5,5 g (0,031 Mol) 4-Methoximinomethyl-phenyl-boronsäure und 40 mL 1,2-Dimethoxyethan wird bei Raumtemperatur mit einer Lösung von 8,2 g (0,077 Mol) Natriumcarbonat in 35 mL Wasser versetzt. Das Reaktionsgemisch wird anschließend auf Rückfluss-Temperatur gebracht und für 12 h gekocht. Zur Aufarbeitung wird auf Raumtemperatur abgekühlt und mit Diethylether extrahiert. Die organische Phase wird abgetrennt und mit Wasser versetzt. Die organische Phase wird erneut abgetrennt, über Natriumsulfat getrocknet und schließlich unter vermindertem Druck eingeengt. Der verbleibende Rückstand wird mit Cyclohexan: Essigsäureethylester = 3:1 als Laufmittel an Kieselgel chromatographiert. Nach dem Einengen des Eluates erhält man 3,8 g (98,8% der Theorie bezogen auf 2-Bromanilin) an 2-(4-Methoximinomethyl-phenyl)-anilin in Form eines Öles.

<sup>1</sup>H-NMR-Spektrum (DMSO/TMS):  $\delta = 3,90$  (3H) ppm.

Ein Gemisch aus 5,0 g (0,033 Mol) 4-Formylphenylboronsäure, 3,4 g (0,041 Mol) Methoxylamin-hydrochlorid, 3,4 g (0,041 Mol) Natriumacetat, 40 mL Methanol und 10 mL Wasser wird 12 h bei Raumtemperatur gerührt. Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch in Wasser verrührt, der entstehende Niederschlag abgesaugt, mit Wasser gewaschen und bei 50°C im Vakuum getrocknet. Man erhält 5,56 g (93,1% der Theorie) an 4-Methoximinomethyl-phenyl-boronsäure als farblose Kristalle mit einem Schmelzpunkt von 199 bis 200°C.

Nach den zuvor beschriebenen Methoden werden auch die in der folgenden Tabelle aufgeführten Biphenylcarboxamide der Formel (I) hergestellt.

# 5 <u>Tabelle 1</u>

$$A \longrightarrow X_{m}$$

$$X_{m}$$

$$X_{n}$$

BspNr.		Physikal. Konstante
2	F <sub>3</sub> C N N O CH <sub>3</sub>	logP 3,42 <sup>a)</sup>
3	F <sub>3</sub> C N H CH <sub>3</sub>	logP 4,65 <sup>a)</sup>
4	F <sub>3</sub> C N H CH <sub>3</sub>	Fp. 107-109°C

BspNr.		Physikal. Konstante
5	F <sub>3</sub> C N H CH <sub>3</sub>	logP 4,23 <sup>a)</sup>
6	F <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>	Fp. 129-131°C
7	F <sub>3</sub> C N O CH <sub>3</sub>	Fp. 125-128°C
8	F <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>	Fp. 110-112°C
9	F <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>	Fp. 118-120°C

BspNr.		Physikal. Konstante
10	F <sub>3</sub> C N N CH <sub>3</sub>	Fp. 158-160°C
11	F <sub>2</sub> HC N CH <sub>3</sub>	Fp. 127-129°C
12	H <sub>3</sub> C N N CH <sub>3</sub>	Fp. 146°C
13	H <sub>3</sub> C N H CH <sub>3</sub>	Fp. 137-139°C
14	H <sub>3</sub> C N H CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	Fp. 152-153°C

BspNr.		Physikal. Konstante
15	H <sub>3</sub> C N O CH <sub>3</sub>	
16	H <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>	
17	H <sub>3</sub> C O N O CH <sub>3</sub>	logP 3,24 <sup>a)</sup>
18	F <sub>3</sub> C N H CH <sub>3</sub>	Fp. 141-143°C
19	H <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>	logP 5,10 <sup>a</sup> )

BspNr.		Physikal. Konstante
20	N CI N CH <sub>3</sub>	Fp. 116-119°C
21	CH <sub>3</sub>	Fp. 144-147°C
22	F <sub>3</sub> C H <sub>3</sub>	logP 4,26 <sup>a)</sup>
23	F <sub>3</sub> C H <sub>3</sub>	logP 4,26 <sup>a)</sup>
24	F <sub>3</sub> C O CH <sub>3</sub>	Fp. 160-162°C

BspNr.		Physikal. Konstante
25	F <sub>3</sub> C O H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	Fp. 148-150°C
26	F <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	Fp. 126-128°C
27	F <sub>3</sub> C H <sub>3</sub>	Fp. 170-172°C
28	F <sub>3</sub> C N H N O H <sub>3</sub> C	logP 3,86 <sup>a)</sup>
29	$F_3C$ $CH_3$ $CH_3$ $CH_3$ $CH_3$	Fp. 164-166°C

BspNr.		Physikal. Konstante
30	F <sub>3</sub> C N H OH	logP 2,78 <sup>a)</sup>
31	F <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	Fp. 89-91°C
32	F <sub>3</sub> C N N N N N N N N N N N N N N N N N N N	logP 3,84 <sup>a)</sup>
33	H <sub>3</sub> CO	logP 4,12 <sup>a)</sup>
34	H <sub>3</sub> C O-CH <sub>3</sub>	logP 4,73 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
35	H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	logP 2,04 <sup>a)</sup>
36	CF <sub>3</sub> O H <sub>3</sub> C	logP 3,75 <sup>a)</sup>
37	CI N N N N N N N N N N N N N N N N N N N	logP 4,08 <sup>a)</sup>
38	CI H <sub>3</sub> C	logP 3,59 <sup>a)</sup>
39	Br N N O H <sub>3</sub> C	logP 3,61 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
40	CH. S. H	logP 3,56 <sup>a)</sup>
	N O H <sub>3</sub> C	
41	F <sub>3</sub> C OH OH	logP 3,19 <sup>a)</sup>
42	H <sub>3</sub> C O H <sub>3</sub> C O H <sub>3</sub> C	logP 3,47 <sup>a)</sup>
43	H <sub>3</sub> C N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,47 <sup>a)</sup>
44	CF <sub>3</sub> O N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,76 <sup>a)</sup>
45	DE H <sub>3</sub> C	logP 3,73 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
46	N-O, CH3	logP 3,73 <sup>a)</sup>
47	H <sub>3</sub> C S H	logP 3,86 <sup>a)</sup>
48	H <sub>3</sub> C O N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,84 <sup>a)</sup>
49	CI N N N N N N N N N N N N N N N N N N N	logP 3,54 <sup>a)</sup>
50	F F O N O CH <sub>3</sub>	logP 3,36 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
51	H <sub>3</sub> C H <sub>3</sub> F F F CH <sub>3</sub>	logP 3,78 <sup>a)</sup>
52	H <sub>3</sub> C N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,25 <sup>a)</sup>
53	S CH <sub>3</sub>	logP 3,75 <sup>a)</sup>
54	H <sub>3</sub> C	logP 3,20 <sup>a)</sup>
55	N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,20 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
56	Br O N O H <sub>3</sub> C	logP 4,39 <sup>a)</sup>
57	Br O N-O CH <sub>3</sub>	logP 4,39 <sup>a)</sup>
58	H <sub>3</sub> C N N N N N N N N N N N N N N N N N N N	logP 3,37 <sup>a)</sup>
59	S CH <sub>3</sub> N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,64 <sup>a)</sup>
60	F O N N N N N N N N N N N N N N N N N N	logP 3,26 <sup>a)</sup>
61	H <sub>3</sub> C N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,26 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
62	F F N N N N N N N N N N N N N N N N N N	logP 3,99 <sup>a)</sup>
63	F F N-O CH <sub>3</sub>	logP 4,02 <sup>a)</sup>
64	H <sub>3</sub> C H <sub>3</sub> C	logP 3,94 <sup>a)</sup>
65	H <sub>3</sub> C N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,97 <sup>a)</sup>
66	H <sub>3</sub> C  CH <sub>3</sub> O  H <sub>3</sub> C  H <sub>3</sub> C	logP 3,82 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
67	CI—S—N—N—N—N—N—N—N—N—N—N—N—N—N—N—N—N—N—N—	logP 3,75 <sup>a)</sup>
68	CI S N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,75 <sup>a)</sup>
69	H <sub>3</sub> C H <sub>3</sub> C	logP 4,40 <sup>a)</sup>
70	H <sub>3</sub> C N N N CH <sub>3</sub>	logP 4,45 <sup>a)</sup>
71	Br N N O H <sub>3</sub> C	logP 3,78 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
72	Br N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,80 <sup>a)</sup>
73	H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	logP 4,00 <sup>a)</sup>
74	H <sub>3</sub> C F CI N-O CH <sub>3</sub>	logP 3,95 <sup>a)</sup>
75	H <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>	Fp. 129-131°C
76	F CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	Fp. 157-158°C
77	F F O N CH <sub>3</sub>	logP 4,77 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
78	F CH <sub>3</sub> OH	
79	H <sub>3</sub> C O CH <sub>3</sub>	Fp. 107-109°C
80	H <sub>3</sub> C O CH <sub>3</sub> H <sub>3</sub> C O	Fp. 168-171°C
81	F CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	Fp. 148-150°C
82	H <sub>3</sub> C N O CH <sub>3</sub>	Fp. 118°C

BspNr.		Physikal. Konstante
83	H <sub>3</sub> C O CH <sub>3</sub>	Fp. 119-121°C
84	F CH <sub>3</sub>	Fp. 160-162°C
85	ON THE CITY OF THE	
86	H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub> O CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	Fp. 115-117°C
87	H <sub>3</sub> C N H N O CH <sub>3</sub>	Fp. 98°C

BspNr.		Physikal. Konstante
88	H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub> O CH <sub>3</sub>	Fp. 108-110°C
89	O N H <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>	Fp. 119-121°C
90	H <sub>3</sub> C O N CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	Fp. 80-82°C
91	ON NO CI	Fp. 68-70°C

BspNr.		Physikal. Konstante
92	H <sub>3</sub> C N H N O	Fp. 55-57°C
93	H <sub>3</sub> C S H	Fp. 110-112°C
94	CI N N O CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub> C	
95	CH <sub>3</sub>	logP 3,68 <sup>a)</sup>
96	H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub> C H <sub>3</sub> C	logP 3,72 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
97	CH <sub>3</sub> CI N N N N N N N N N N N N N N N N N N	logP 3,76 <sup>a)</sup>
98	H <sub>3</sub> C CI N N	logP 3,81 <sup>a)</sup>
99	CI S CI	logP 4,67 <sup>a)</sup>
100	H <sub>3</sub> C O-N CI S CI	logP 4,72 <sup>a)</sup>
101	ON NO2	logP 3,26 <sup>a)</sup>
102	H <sub>3</sub> C NO <sub>2</sub>	logP 3,26 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
103	H <sub>3</sub> C O H <sub>3</sub> C O	logP 3,87 <sup>a)</sup>
104	H <sub>3</sub> C N N O CH <sub>3</sub>	Fp. 94-97°C
105	H <sub>3</sub> C	Fp. 103-105°C
106	H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	Fp. 108-109°C

BspNr.		Physikal. Konstante
107	H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	Fp. 84-86°C
108	CH <sub>3</sub>	logP 3,10 <sup>a)</sup>
109	H <sub>3</sub> C O-N	
110	CH <sub>3</sub> O N H <sub>3</sub> C S O O O O O O O O O O O O O O O O O O	logP 3,58 <sup>a)</sup>
111	H <sub>3</sub> C S	logP 3,59 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
112	F F F	logP 3,21 <sup>a)</sup>
	H <sub>3</sub> C N	
	N—F	
	н <sub>з</sub> с-о	
113		logP 2,43 <sup>a)</sup>
	N OH	
	N <sub>3</sub> C O	
114	F	logP 3,00 <sup>a)</sup>
	H <sub>3</sub> C-N	
	N= F H <sub>3</sub> C-O	
115	F F O N	Fp. 157-159°C
	CH <sub>3</sub>	
	0	
L	H₃C CH₃	

BspNr.		Physikal. Konstante
116	H <sub>3</sub> C O N CH <sub>3</sub>	Fp. 70-72°C
117	H <sub>3</sub> C Cl CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	Fp. 75°C
118	H <sub>3</sub> C N CI N O H <sub>3</sub> C	logP 4.22 <sup>a)</sup>

BspNr.		Physikal. Konstante
119	H <sub>3</sub> C	Fp. 90-92°C
120	H <sub>3</sub> C H <sub>3</sub> C H <sub>3</sub> C	Fp. 141-143°C
121	CI S CF <sub>3</sub>	Fp. 82-84°C

- 92 -

Die Bestimmung der in Tabelle 1 angegebenen logP-Werte erfolgte gemäß EEC-Directive 79/831 Annex V.A8 durch HPLC (High Performance Liquid Chromatography) an einer Phasenumkehrsäule (C 18). Temperatur: 43°C.

- 5 (a) Eluenten für die Bestimmung im sauren Bereich: 0,1 % wässrige Phosphorsäure, Acetonitril; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit a) markiert.
- (b) Eluenten für die Bestimmung im neutralen Bereich: 0,01-molare wässrige Phos-10 phatpuffer-Lösung, Acetonitril; linearer Gradient von 10 % Acetonitril bis 90 % Acetonitril - entsprechende Messergebnisse sind in Tabelle 1 mit b) markiert.

15

Die Eichung erfolgte mit unverzweigten Alkan-2-onen (mit 3 bis 16 Kohlenstoffatomen), deren logP-Werte bekannt sind (Bestimmung der logP-Werte anhand der Retentionszeiten durch lineare Interpolation zwischen zwei aufeinanderfolgenden Alkanonen).

Die lambda-max-Werte wurden an Hand der UV-Spektren von 200 nm bis 400 nm in den Maxima der chromatographischen Signale ermittelt.

- 93 -

#### **Anwendungsbeispiele**

### Beispiel A

# 5 Podosphaera-Test (Apfel) / protektiv

Lösungsmittel: 24,5 Gewichtsteile Aceton

24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid

Emulgator: 1,0 Gewichtsteile Alkyl-Aryl-Polyglykolether

10

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension des Apfelmehltauerregers Podosphaera leucotricha inokuliert. Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 23°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % aufgestellt.

20

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

- 94 -

Tabelle A: Podosphaera-Test (Apfel) / protektiv

Winterto CC		1 A v C v v an d ma a m a m	0/ 337:
Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in	% Wir-
			kungsgrad
(T 1)		g/ha	100
(I-1)	F F O N H O CH <sub>3</sub>	100	100
(I-3)	F <sub>3</sub> C N H CH <sub>3</sub>	100	100
(I-4)	F <sub>3</sub> C N N S H N O CH <sub>3</sub>	100	95
(I-5)	F <sub>3</sub> C N N N S H CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub> O—CH	100	100
(I-10)	F F N H CH <sub>3</sub>	100	88

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in	% Wir- kungsgrad
		g/ha	11011958100
(I-11)	F <sub>2</sub> HC N H CH <sub>3</sub>	100	93
(I-20)	CI H O-CH <sub>3</sub>	100	100
(I-22)	F <sub>3</sub> C H <sub>3</sub>	100	100
(I-23)	F <sub>3</sub> C H CH <sub>3</sub>	100	100
(I-24)	F <sub>3</sub> C N N H CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	100	75

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-26)	F <sub>3</sub> C H	100	100
(I-28)	CH <sub>3</sub> F <sub>3</sub> C  N  CH <sub>3</sub> N  H <sub>3</sub> C	100	99
(I-41)	F <sub>3</sub> C O N OH CH <sub>3</sub> OH	100	98
(I-47)	H <sub>3</sub> C O H <sub>3</sub> C O	100	100
(I-49)	CI F F F O H	100	100

Wirkstoff		Aufwandmenge	% Wir-
		an Wirkstoff in	kungsgrad
4144 116		g/ha	
(I-50)	F F O N O CH <sub>3</sub>	100	93
(I-51)	H <sub>3</sub> C H <sub>3</sub>	100	100
(I-52)	H <sub>3</sub> C N-O CH <sub>3</sub>	100	77

- 98 -

# Beispiel B

#### Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

5 Lösungsmittel: 24,5 Gewichtsteile Aceton

24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid

Emulgator: 1,0 Gewichtsteile Alk yl-Aryl-Polyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Sporensuspension von Sphaerotheca fuliginea inokuliert. Die Pflanzen werden dann bei ca. 23°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 70 % im Gewächshaus aufgestellt.

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wir20 kungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von
100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

15

Tabelle B: Sphaerotheca-Test (Gurke) / protektiv

Wirkstoff		Aufwandmenge	% Wir-
		an Wirkstoff in	kungsgrad
		g/ha	
(I-1)	F CH <sub>3</sub>	100	100
(I-3)	F <sub>3</sub> C H CH <sub>3</sub>	100	100
(I-4)	F <sub>3</sub> C N H CH <sub>3</sub>	100	93
(I-5)	F <sub>3</sub> C N H CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	100	100

Wirkstoff		Aufwandmenge	% Wir-
		an Wirkstoff in g/ha	kungsgrad
(I-10)	F—F H	100	88
(I-11)	F <sub>2</sub> HC N H N CH <sub>3</sub>	100	95
(I-20)	CI H	100	100
(I-22)	F <sub>3</sub> C O H O CH <sub>3</sub>	100	100
(I-23)	F <sub>3</sub> C H N S CH <sub>3</sub>	100	100

Wirkstoff		Aufwandmenge	% Wir-
		an Wirkstoff in g/ha	kungsgrad
(I-24)	F <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>	100	92
(I-26)	F <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	100	100
(I-28)	F <sub>3</sub> C N H <sub>3</sub> C	100	100
(I-41)	F <sub>3</sub> C OH OH	100	72
(I-47)	H <sub>3</sub> C O H <sub>3</sub> C	100	100

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-49)	CI F F N H	100	100
(I-50)	F F O N O CH <sub>3</sub>	100	97
(I-51)	H <sub>3</sub> C  CH <sub>3</sub> N  F  F  CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	100	100
(I-52)	H <sub>3</sub> C N-O CH <sub>3</sub>	100	97

- 103 -

# Beispiel C

10

15

25

#### Venturia - Test (Apfel) / protektiv

5 Lösungsmittel: 24,5 Gewichtsteile Aceton

24,5 Gewichtsteile Dimethylacetamid

Emulgator: 1,0 Gewichtsteile Alkyl-Aryl-Polyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer wässrigen Konidiensuspension des Apfelschorferregers Venturia inaequalis inokuliert und verbleiben dann 1 Tag bei ca. 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubations-kabine.

Die Pflanzen werden dann im Gewächshaus bei ca. 21°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von ca. 90 % aufgestellt.

12 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle C: Venturia - Test (Apfel) / protektiv

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in	% Wir- kungsgrad
		g/ha	
(I-1)	F F ON H	100	100
(I-3)	F <sub>3</sub> C N N N CH <sub>3</sub>	100	100
(I-4)	F <sub>3</sub> C N N N S CH <sub>3</sub>	100	100
(I-5)	F <sub>3</sub> C O H O CH <sub>3</sub>	100	100

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in	% Wir- kungsgrad
		g/ha	
(I-10)	F F N H	100	88
(7.11)	CH <sub>3</sub>	100	100
(I-11)	F <sub>2</sub> HC N N N CH <sub>3</sub>		
(I-20)	CI H N O-CH <sub>3</sub>	100	100
(I-22)	F <sub>3</sub> C H <sub>3</sub>	100	100
(I-23)	F <sub>3</sub> C H N CH <sub>3</sub>	100	100

Wirkstoff		Aufwandmenge	% Wir-
		an Wirkstoff in g/ha	kungsgrad
(I-24)	F <sub>3</sub> C N CH <sub>3</sub>	100	100
(I-26)	F <sub>3</sub> C H <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	100	100
(I-28)	F <sub>3</sub> C N H N O H <sub>3</sub> C	100	100
(I-41)	F <sub>3</sub> C N H OH	100	100
(I-47)	H <sub>3</sub> C N N H <sub>3</sub> C	100	100

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-49)	CI N H <sub>3</sub> C	100	100
(I-50)	F F O N H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	100	100
(I-51)	H <sub>3</sub> C CH <sub>3</sub>	100	100
(I-52)	H <sub>3</sub> C N-O CH <sub>3</sub>	100	100

- 108 -

# Beispiel D

10

15

20

25

### Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

5 Lösungsmittel: 25 Gewichtsteile N,N-Dimethylacetamid

Emulgator: 0,6 Gewichtsteile Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit werden junge Pflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge besprüht. Nach Antrocknen des Spritzbelages werden die Pflanzen mit einer Konidiensuspension von Puccinia recondita besprüht. Die Pflanzen verbleiben 48 Stunden bei 20°C und 100 % relativer Luftfeuchtigkeit in einer Inkubationskabine.

Die Pflanzen werden dann in einem Gewächshaus bei einer Temperatur von ca. 20°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von 80 % aufgestellt, um die Entwicklung von Rostpusteln zu begünstigen.

10 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle D: Puccinia-Test (Weizen) / protektiv

Wirkstoff		Aufwandmenge	% Wir-
		an Wirkstoff in	kungsgrad
		g/ha	
(I-1)	F F ON H OCH3	250	100
(I-3)	F <sub>3</sub> C N H CH <sub>3</sub> CCH <sub>3</sub>	250	100
(I-10)	F <sub>3</sub> C N N CH <sub>3</sub>	250	100
(I-20)	N CI N CH <sub>3</sub>	250	100

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in	% Wir- kungsgrad
(I-49)	CI N	g/ha 250	100
(I-51)	H <sub>3</sub> C  CH <sub>3</sub> F  F  CH <sub>3</sub> CH <sub>3</sub>	250	100

- 111 -

# Beispiel E

# Alternaria-Test (Tomate) / protektiv

5 Lösungsmittel:

49 Gewichtsteile N,N-Dimethylformamid

Emulgator:

10

15

20

1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit den angegebenen Mengen Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

Zur Prüfung auf protektive Wirksamkeit bespritzt man junge Tomatenpflanzen mit der Wirkstoffzubereitung in der angegebenen Aufwandmenge. 1 Tag nach der Behandlung werden die Pflanzen mit einer Sporensuspension von Alternaria solani inokuliert und stehen dann 24 h bei 100 % rel. Feuchte und 20°C. Anschließend stehen die Pflanzen bei 96 % rel. Luftfeuchtigkeit und einer Temperatur von 20°C.

7 Tage nach der Inokulation erfolgt die Auswertung. Dabei bedeutet 0 % ein Wirkungsgrad, der demjenigen der Kontrolle entspricht, während ein Wirkungsgrad von 100 % bedeutet, dass kein Befall beobachtet wird.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele überlegene Wirksamkeit gegenüber dem Stand der Technik:

Tabelle E: Alternaria-Test (Tomate) / protektiv

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in g/ha	% Wir- kungsgrad
(I-1)	F CH <sub>3</sub>	750	100
(I-2)	F F O N O CH <sub>3</sub>	750	100
(I-6)	F F N N H S CH <sub>3</sub>	750	90
(I-11)	F O N H O H <sub>3</sub> C	750	95

- 113 -

# Beispiel F

### Hemmtest an Riesenkolonien von Basidiomyceten

Aus Kolonien von Gloeophyllum trabeum, Coniophora puteana, Poria placenta, Lentinus tigrinus und Coriolus versicolor wurden Myzelstücke ausgestochen und auf einem Malzextrakt-Pepton-haltigen Agarnährboden bei 26°C inkubiert Die Hemmung des Hyphenwachstums auf wirkstoffhaltigen Nährböden wurde mit dem Längenwachstum auf Nährboden ohne Wirkstoffzusatz verglichen und als prozentuale Hemmung bonitiert.

Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden erfindungsgemäßen Verbindungen der Herstellungsbeispiele gute Wirksamkeit:

Tabelle F: Hemmtest an Riesenkolonien von Basidiomyceten

Wirkstoff		Aufwandmenge an Wirkstoff in ppm	% Wirkungsgrad
(I-1)	F CH <sub>3</sub>	6	100
(I-10)	F <sub>3</sub> C N N N O CH <sub>3</sub>	6	100
(I-11)	F O N H O H <sub>3</sub> C	6	100
(I-12)	H <sub>3</sub> C N N CH <sub>3</sub>	6	100

#### **Patentansprüche**

## 1. Biphenylcarboxamide der Formel (I)

$$A \longrightarrow X_{m}$$

$$X_{m}$$

$$Y_{m}$$

5

in welcher

R für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halo-

genalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

10

Z für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5

Halogenatomen steht,

15

X und Y unabhängig voneinander für Halogen, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogen

atomen, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenalkylthio

genatomen, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Alkenyloxy, C<sub>2</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkenyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Alkinyloxy, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkinyloxy mit 1

bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>8</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxycarbonyl, C<sub>1</sub>-

 $C_8$ -Alkylsulfinyl,  $C_1$ - $C_8$ -Alkylsulfonyl,  $C_1$ - $C_8$ -Halogenalkylsulfinyl

mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Halogenalkylsulfonyl mit 1 bis 5

Halogenatomen oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoximino-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkyl stehen,

25

20

m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,

WO 02/08197

n für ganze Zahlen von 0 bis 4 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht,

5 und

#### A für einen Rest der Formel

$$R^1$$
 $N$ 
 $R^2$ 
 $R^2$ 

steht, worin

10

α) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl steht und

15

 $R^2$  für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Cyano,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl,  $C_1$ - $C_4$ -Alkoxy oder  $C_1$ - $C_4$ -Alkylthio steht und

20

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht,

- 117 -

5	β)	R <sup>1</sup>	für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -Alkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> -Cycloalkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkoxy, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkylthio, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -alkyl steht und
10		$\mathbb{R}^2$	für Fluor steht und
10		$\mathbb{R}^3$	für Wasserstoff, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -alkyl, C <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> -
15			Alkenyl, C <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> -Cycloalkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkylthio-C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -alkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Halogenalkylthio-C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkoxy-C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -alkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Halogenalkoxy-C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht,
20	oder		
20	γ)	$R^1$	für Wasserstoff, Cyano, Halogen, Nitro, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C <sub>3</sub> -C <sub>6</sub> -C <sub>4</sub> -Lalled, C <sub>4</sub> -C <sub>4</sub> -Alkerty, C <sub>5</sub> -C <sub>6</sub> -Lalled conclination of the
25			Cycloalkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkoxy, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Alkylthio, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, Aminocarbonyl, oder Aminocarbonyl-C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -alkyl steht und
		$\mathbb{R}^2$	für Fluor steht und
30		$\mathbb{R}^3$	für Wasserstoff, C <sub>2</sub> -C <sub>4</sub> -Alkyl, C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, Hydroxy-C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> -alkyl, C <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> -

Alkenyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder Phenyl steht,

5

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

10

R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

15

R<sup>6</sup> für Halogen, Cyano oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

20

A für einen Rest der Formel

25

 $R^7$  und  $R^8$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

- 119 -

R<sup>9</sup> für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für Halogen steht,

oder

5

A für einen Rest der Formel

10

R<sup>10</sup> für Wasserstoff, Halogen, Hydroxy, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

15

A für einen Rest der Formel

20

R<sup>11</sup> für Halogen, Hydroxy, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Halogenatomen, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

25

R<sup>12</sup> für Wasserstoff, Halogen, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Halogen

- 120 -

atomen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfinyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Alkylsulfonyl steht,

oder

5

A für einen Rest der Formel

steht, worin

 $R^{13}$  für  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

R<sup>14</sup> für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl steht,

 $X^1$  für ein Schwefelatom, für SO, SO<sub>2</sub> oder CH<sub>2</sub> steht,

p für 0, 1 oder 2 steht,

oder

20 A für einen Rest der Formel

steht, worin

 $R^{15}$  für  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

25

15

A für einen Rest der Formel

steht, worin

R<sup>16</sup> für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

10

5

 $R^{17}$  für Halogen, Cyano,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

15

 $R^{18}$  für Wasserstoff, Halogen,  $C_1\text{-}C_4\text{-}Alkyl$  oder für  $C_1\text{-}C_4\text{-}$  Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

20

R<sup>19</sup> für Wasserstoff, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, Hydroxy-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylsulfonyl, Di(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)aminosulfonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylcarbonyl oder für gegebenenfalls substituiertes Phenylsulfonyl oder Benzoyl steht,

- 122 -

A für einen Rest der Formel

 $R^{20}$  und  $R^{21}$  unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen, Amino,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen stehen und

 $R^{22}$  für Wasserstoff, Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

5

10

15

20

A für einen Rest der Formel

R<sup>23</sup> und R<sup>24</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Halogen,
Amino, Nitro, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1
bis 5 Halogenatomen stehen und

 $R^{25}$  für Wasserstoff, Halogen,  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder für  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

5

10

15

20

A für einen Rest der Formel

R<sup>26</sup> für Wasserstoff, Halogen, Amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)amino, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogen-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

R<sup>27</sup> für Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

R<sup>28</sup> für Wasserstoff, Halogen, Amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)amino, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogen-alkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht und

R<sup>29</sup> für Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

A für einen Rest der Formel

steht, worin

R<sup>30</sup> für Halogen, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

10

5

 $R^{31}$  für Wasserstoff oder  $C_1\text{-}C_4\text{-}Alkyl$  steht und

R<sup>32</sup> für Halogen oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl steht,

15

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

20

 $R^{33}$  für  $C_1$ - $C_4$ -Alkyl oder  $C_1$ - $C_4$ -Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,

WO 02/08197

- 125 -

A für einen Rest der Formel

10

15

20

25

steht, worin

PCT/EP01/07981

5 R<sup>34</sup> für Wasserstoff, Halogen oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl steht.

- 2. Biphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher
  - R für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,
  - Z für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Halogenatomen steht,
  - X und Y unabhängig voneinander für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylthio, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Alkenyloxy, C<sub>2</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkenyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Alkinyloxy, C<sub>3</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkinyloxy mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>3</sub>-C<sub>7</sub>-Cycloalkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoxycarbonyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkylsulfinyl, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkylsulfinyl mit 1 bis 5 Halogenatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Halogenalkylsulfonyl mit 1 bis 5 Halogenatomen oder für C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkoximino-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl stehen,
    - m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,

WO 02/08197

n für ganze Zahlen von 0 bis 4 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht,

und

5

A für einen Rest der Formel

$$\mathbb{R}^1$$
 $\mathbb{R}^2$ 
 $\mathbb{R}^3$ 

steht, worin

10

α) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor, Chlor- und/oder Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

15

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Methoxy,
 Ethoxy, Methylthio oder Ethylthio steht und

20

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht,

25

oder

β) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Ethyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor-

- 127 -

und/oder Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

5

R<sup>2</sup> für Fluor steht und

10

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht,

oder

15

γ) R¹ für Wasserstoff, Cyano, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, C₁-C₂-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor, Chlor- und/oder Bromatomen, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, C₁-C₂-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Aminocarbonyl, Aminocarbonylmethyl oder Aminocarbonylethyl steht,

20

R<sup>2</sup> für Fluor steht und

25

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor und/oder Bromatomen, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl oder Phenyl steht,

30

- 128 -

A für einen Rest der Formel

5 R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R<sup>6</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder
Bromatomen steht,

oder

15 A für einen Rest der Formel

R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R<sup>9</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht,

oder

- 129 -

A für einen Rest der Formel

steht, worin

5

R<sup>10</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlorund/oder Bromatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkylthio mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

10

oder

A für einen Rest der Formel

steht,

15

R<sup>11</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

20

R<sup>12</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkoxy mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkylsulfinyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkylsulfonyl

- 130 -

oder

Α für einen Rest der Formel

steht, worin

5

 $R^{13}$ für Methyl, Ethyl oder für C1-C2-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

10

 $R^{14}$ für Methyl oder Ethyl steht,

 $\mathbf{X}^{\mathbf{l}}$ 

für ein Schwefelatom, für SO, SO2 oder CH2 steht und

p

für 0, 1 oder 2 steht,

15

oder

für einen Rest der Formel Α

steht, worin

20

 $R^{15}$ für Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

- 131 -

A für einen Rest der Formel

R<sup>16</sup> für Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

A für einen Rest der Formel

10

5

R<sup>17</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl, Isopropyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

15

R<sup>18</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

20

R<sup>19</sup> Wasserstoff, Methyl, Ethyl, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen, C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Alkoxy-C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-alkyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl, Methylsulfonyl oder Dimethylaminosulfonyl steht,

25

- 132 -

A für einen Rest der Formel

R<sup>20</sup> und R<sup>21</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R<sup>22</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

5

10

15

20

25

A für einen Rest der Formel

R<sup>23</sup> und R<sup>24</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Nitro, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen stehen und

R<sup>25</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

- 133 -

A für einen Rest der Formel

für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)amino, Cyano, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

R<sup>27</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

15 A für einen Rest der Formel

10

20

25

R<sup>28</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylamino, Di-(C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl)amino, Cyano, Methyl, Ethyl oder für C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht und

R<sup>29</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

15

20

A für einen Rest der Formel



steht, worin

5 R<sup>30</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlor- und/oder Bromatomen steht,

oder

10 A für einen Rest der Formel

R<sup>31</sup> für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und

R<sup>32</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht,

oder

A für einen Rest der Formel

R<sup>33</sup> für Methyl, Ethyl oder C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>-Halogenalkyl mit 1 bis 5 Fluor-, Chlorund/oder Bromatomen steht,

- 135 -

oder

A für einen Rest der Formel

steht, worin

5

15

20

25

R<sup>34</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

- 3. Biphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher
- 10 R für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl steht,
  - Z für Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl steht,
  - X und Y unabhängig voneinander für Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Cyano, Hydroxy, Carboxyl, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, sek.-Butyl, i-Butyl, tert.-Butyl, Trichlormethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl, Methoxy, Ethoxy, Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Methylthio, Trifluormethylthio, Difluorchlormethylthio, Allyloxy, Propargyloxy, Cyclopropyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cycloheptyl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl, Methoximinomethyl, Ethoximinomethyl, Methoximinoethyl oder Ethoximinoethyl stehen,
    - m für ganze Zahlen von 0 bis 3 steht, wobei X für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn m für 2 oder 3 steht,
    - n für die Zahlen 0 bis 4 steht, wobei Y für gleiche oder verschiedene Reste steht, wenn n für 2, 3 oder 4 steht,

WO 02/08197

und

A für einen Rest der Formel

$$R^1$$
 $N$ 
 $R^2$ 
 $R^2$ 

steht, worin

5

α) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und

10

R<sup>2</sup> für Wasserstoff, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Methoxy,
 Ethoxy, Methylthio oder Ethylthio steht und

15

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht,

oder

20

β) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Ethyl, Isopropyl, Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und

25

R<sup>2</sup> für Fluor steht und

- 137 -

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht,

oder

5

10

15

γ) R<sup>1</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Methyl, Ethyl, Isopropyl, Monofluormethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Cyclopropyl, Methoxy, Ethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethylthio oder Difluormethylthio steht und

R<sup>2</sup> für Fluor steht und

R<sup>3</sup> für Wasserstoff, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Hydroxymethyl, Hydroxyethyl oder Phenyl steht,

oder

A für einen Rest der Formel

20

R<sup>4</sup> und R<sup>5</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und

25

R<sup>6</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluorchlormethoxy oder Trichlormethoxy steht,

- 138 -

oder

A für einen Rest der Formel

5

R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und

10

R<sup>9</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht,

für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano,

oder

 $R^{10}$ 

A für einen Rest der Formel

Trichlormethylthio steht,

15

Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Difluormethyl, Trifluormethyl, Difluor-chlormethyl, Trichlormethyl, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Trichlormethoxy, Trifluormethylthio, Difluormethylthio, Difluormethylthio oder

20

25

- 139 -

A für einen Rest der Formel

R<sup>11</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Iod, Hydroxy, Cyano, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl, Trichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluormethoxy oder Trichlormethoxy steht und

R<sup>12</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, i-Butyl, sek.-Butyl, tert.-Butyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl, Trichlormethyl, Methoxy, Ethoxy, Methylthio, Ethylthio, Trifluormethoxy, Difluormethoxy, Difluormethoxy, Trichlormethoxy, Methylsulfinyl oder Methylsulfonyl steht,

oder

5

10

15

20

25

A für einen Rest der Formel

R<sup>13</sup> für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht und

R<sup>14</sup> für Methyl oder Ethyl steht,

WO 02/08197

X<sup>1</sup> für ein Schwefelatom, für SO, SO<sub>2</sub> oder CH<sub>2</sub> steht und

p für 0, 1 oder 2 steht,

5

oder

A für einen Rest der Formel

steht worin

10

R<sup>15</sup> für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

oder

15

A für einen Rest der Formel

20

R<sup>16</sup> für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

- 141 -

A für einen Rest der Formel

steht, worin

R<sup>17</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Methyl, Ethyl, Isopropyl,
Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder
Trichlormethyl steht,

R<sup>18</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl steht und

R<sup>19</sup> Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Methoxymethyl, Ethoxymethyl, Hydroxymethyl oder Hydroxyethyl steht,

oder

5

10

15

20

25

A für einen Rest der Formel

$$R^{21}$$
 steht, worin

R<sup>20</sup> und R<sup>21</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluormethyl oder Trichlormethyl stehen und

R<sup>22</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluor-methyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

oder

# A für einen Rest der Formel

5

R<sup>23</sup> und R<sup>24</sup> unabhängig voneinander für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Nitro, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl stehen und

10

R<sup>25</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

15

oder

#### A für einen Rest der Formel

20

R<sup>26</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methylamino, Dimethylamino, Cyano, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht und

25

R<sup>27</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

- 143 -

oder

### A für einen Rest der Formel

R<sup>28</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Amino, Methylamino, Dimethylamino, Cyano, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht und

10

5

R<sup>29</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

15

oder

### A für einen Rest der Formel

20

R<sup>30</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

15

20

A für einen Rest der Formel

R<sup>31</sup> für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht und

R<sup>32</sup> für Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht,

oder

10 A für einen Rest der Formel

R<sup>33</sup> für Methyl, Ethyl, Trifluormethyl, Difluormethyl, Difluorchlormethyl oder Trichlormethyl steht,

oder

A für einen Rest der Formel

R<sup>34</sup> für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl oder Ethyl steht.

- 145 -

4. Verfahren zur Herstellung von Biphenylcarboxamiden der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man

a) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

5

in welcher

A die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat und

10

G für Halogen, Hydroxy oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkoxy steht,

mit Anilin-Derivaten der Formel (III)

15

in welcher

R, Z, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

WO 02/08197

- 146 -

oder

b) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

$$A = \begin{bmatrix} A & A & A \\ A & A \\ A & A \end{bmatrix}$$

$$(IV)$$

PCT/EP01/07981

5

in welcher

A, X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)

$$G^1O_BOG^2$$

$$V_n = N_OZ$$

$$(V)$$

in welcher

15

R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 $G^1$  und  $G^2$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

20

25

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

c) Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)

WO 02/08197

- 147 -

PCT/EP01/07981

in welcher

5 A, X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 $G^1$  und  $G^2$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

10 mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

in welcher

15 R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

20 oder

d) Biphenylacyl-Derivate der Formel (VIII)

- 148 -

in welcher

A, R, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

mit Alkoxaminen der Formel (IX)

$$Z-O-NH_2 \times HCI$$
 (IX)

in welcher Z die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

15 oder

5

10

e) Hydroxylamin-Derivate der Formel (I-a)

in welcher

10

20

25

A, R, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

mit Verbindungen der Formel (X)

$$Z^{1}$$
—E (X)

in welcher

 $Z^1$  für  $C_1$ - $C_6$ -Alkyl steht und

E für Chlor, Brom, Iod, Methansulfonyl oder p-Toluolsulfonyl steht,

15 oder

Z¹ und E zusammen für (Di-C1-C6-alkyl)sulfat stehen,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt,

oder

f) Carboxamid-Derivate der Formel (IV)

$$A \xrightarrow{Br} X_m$$
 (IV)

in welcher

A, X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

15

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

$$\begin{array}{c|c}
Br \\
N & Z
\end{array}$$
(VII)

5 in welcher

R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

in Gegenwart eines Palladium- oder Platin-Katalysators und in Gegenwart von 4,4,4',4',5,5,5',5'-Octamethyl-2,2'-bis-1,3,2-dioxaborolan, gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels und gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels umsetzt.

5. Anilin-Derivate der Formel (III)

in welcher

R, Z, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

20 6. Verfahren zur Herstellung von Anilin-Derivaten der Formel (III) gemäß Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass man

# g) 2-Halogenanilin-Derivate der allgemeinen Formel (XI)

in welcher

5

10

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

Hal für Halogen steht,

mit Boronsäure-Derivaten der Formel (V)

$$G^1O \longrightarrow OG^2$$

$$V \longrightarrow V \longrightarrow V$$

$$V$$

in welcher

15

R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 $G^1$  und  $G^2$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

20

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt

- 152 -

oder

### h) Anilinboronsäuren der Formel (XII)

$$X_m$$
 $NH_2$ 
 $G^1O^BOG^2$ 
(XII)

in welcher

5

10

15

20

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

G<sup>1</sup> und G<sup>2</sup> jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

mit Phenyloxim-Derivaten der Formel (VII)

$$V_n$$
  $V_n$   $V_n$ 

in welcher

R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

7. Boronsäure-Derivate der Formel (V)

in welcher

5

R, Z, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 $G^1$  und  $G^2$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen.

10

- 8. Verfahren zur Herstellung von Boronsäure-Derivaten der Formel (V) gemäß Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, dass man
  - i) Phenylboronsäuren der Formel (XIII)

15

$$G^{1}O$$
 $G^{2}O$ 
 $Y_{n}$ 
 $(XIII)$ 

in welcher

20

R, Y und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 $G^1$  und  $G^2$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

- 154 -

mit Alkoxaminen der Formel (IX)

$$Z-O-NH_2 \times HCI$$
 (IX)

in welcher

5

10

20

Z die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen hat,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

9. Carboxamid-Boronsäure-Derivate der Formel (VI)

$$A \longrightarrow N \longrightarrow X_m$$

$$G^1O \longrightarrow OG^2$$
(VI)

in welcher

A, X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

G<sup>1</sup> und G<sup>2</sup> jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen.

- Verfahren zur Herstellung von Carboxamid-Boronsäure-Derivaten der Formel
   (VI) gemäß Anspruch 9, dadurch gekennzeichnet, dass man
- j) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

$$\bigcap_{A \to G} (II)$$

in welcher

A und G die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

5

mit Anilinboronsäuren der Formel (XII)

$$X_m$$
 $NH_2$ 
 $G^1O^BOG^2$ 
(XII)

in welcher

10

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 $G^1$  und  $G^2$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

15

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Katalysators umsetzt.

20

11. Biphenylacyl-Derivate der Formel (VIII)

- 156 -

in welcher

A, R, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

5

- 12. Verfahren zur Herstellung von Biphenylacyl-Derivaten der Formel (VIII) gemäß Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass man
  - k) Carbonsäure-Derivate der Formel (II)

10

in welcher

A und G die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

15

mit 2-Benzaldehyd-anilin-Derivaten der Formel (XIV)

$$H_2N$$
 $X_m$ 
 $Y_n$ 
 $Y_n$ 

10

15

20

in welcher

R, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umsetzt.

13. 2-Benzaldehyd-anilin-Derivate der Formel (XIV)

 $H_2N$   $Y_n$   $Y_n$ 

in welcher

R, X, Y, m und n die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

- 14. Verfahren zur Herstellung von 2-Benzaldehyd-anilin-Derivaten der Formel (XIV) gemäß Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass man
  - 1) Anilin-Derivate der Formel (XI)

in welcher

WO 02/08197

- 158 -

X und m die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

PCT/EP01/07981

Hal für Halogen steht,

5

mit Phenylboronsäure-Derivaten der Formel (XIII)

in welcher

10

R, Y und n die Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben und

 $G^1$  und  $G^2$  jeweils für Wasserstoff oder zusammen für Tetramethylethylen stehen,

15

gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels, sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten organischen Verdünnungsmittels umsetzt.

- 20 15. Mittel zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einem Biphenylcarboxamid der Formel (I) gemäß Anspruch 1 neben Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen.
- Verwendung von Biphenylcarboxamiden der Formel (I) gemäß Anspruch 1
   zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen.

- 159 -

- 17. Verfahren zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Biphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf die Mikroorganismen und/oder deren Lebensraum ausbringt.
- 5 18. Verfahren zur Herstellung von Mitteln zur Bekämpfung unerwünschter Mikroorganismen, dadurch gekennzeichnet, dass man Biphenylcarboxamide der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Stoffen vermischt.

#### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

In titional Application No PCT/EP 01/07981

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C07D231/44 C07E C07D277/56 C07D207/34 C07D213/82 C07D307/30 C07D263/34 C07D307/68 C07D333/38 CO7D327/06 C07C251/48 A01N43/00 C07C233/65 C07C211/45 C07C223/06 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) CO7D C07C Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Data C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No. Υ WO 00 14071 A (MAULER MACHNIK ASTRID 1 - 18;KUGLER MARTIN (DE); STENZEL KLAUS (DE); BAY) 16 March 2000 (2000-03-16) cited in the application page 7 -page 8; claims; examples WO 00 09482 A (NOVARTIS ERFIND VERWALT Y 1 - 18GMBH ; EBERLE MARTIN (CH); NOVARTIS AG (CH)) 24 February 2000 (2000-02-24) claims; examples WO 99 09013 A (BASF AG ; EICKEN KARL (DE); 1 - 18Α LORENZ GISELA (DE); RACK MICHAEL (DE);) 25 February 1999 (1999-02-25) cited in the application claims; examples Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in annex. Special categories of cited documents: "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international "X" document of particular relevance; the claimed invention filing date cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another "Y" document of particular relevance; the claimed invention citation or other special reason (as specified) cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such docu-"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or ments, such combination being obvious to a person skilled in the art. other means document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 13/11/2001 5 November 2001 Authorized officer Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Menegaki, F Fax: (+31-70) 340-3016

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

iformation on patent family members

In Ational Application No
PCT/EP 01/07981

	Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date	
WO OC	)14071	,A	16-03-2000	DE AU BR WO		A	09-03-2000 27-03-2000 22-05-2001 16-03-2000
WO 00	009482	A	24-02-2000	AU BR CN WO EP		A1	06-03-2000 08-05-2001 05-09-2001 24-02-2000 13-06-2001
WO 99	909013	A	25-02-1999	DE AU BR CN WO EP HU JP PL US	19735224 9069098 9811168 1267285 9909013 1003725 0004463 2001515068 338735 6147104	A A T A1 A1 A2 T A1	18-02-1999 08-03-1999 25-07-2000 20-09-2000 25-02-1999 31-05-2000 28-05-2001 18-09-2001 20-11-2000 14-11-2000

#### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

In: \_\_itionales Aktenzeichen

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 C07D231/44 C07D277/56 C07D207/34 C07D213/82 C07D307/30 C07D307/68 C07D333/38 C07D327/06 C07D263/34 C07C251/48 C07C233/65 C07C211/45 C07C223/06 A01N43/00 Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK **B. RECHERCHIERTE GEBIETE** Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7 C07D C07C Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, CHEM ABS Data, BEILSTEIN Data C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Kategorie® Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile Betr. Anspruch Nr. Υ WO 00 14071 A (MAULER MACHNIK ASTRID 1 - 18; KUGLER MARTIN (DE); STENZEL KLAUS (DE); BAY) 16. März 2000 (2000-03-16) in der Anmeldung erwähnt Seite 7 -Seite 8; Ansprüche; Beispiele Υ WO 00 09482 A (NOVARTIS ERFIND VERWALT 1 - 18GMBH ; EBERLE MARTIN (CH); NOVARTIS AG (CH)) 24. Februar 2000 (2000-02-24) Ansprüche; Beispiele WO 99 09013 A (BASF AG ; EICKEN KARL (DE); Α 1 - 18LORENZ GISELA (DE); RACK MICHAEL (DE);) 25. Februar 1999 (1999-02-25) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche; Beispiele Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu Siehe Anhang Patentfamilie entnehmen \*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der ° Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "E" älleres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung \*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zwelfelhaft er-scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtel werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach \*&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist Datum des Abschlusses der internationalen Recherche Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 13/11/2001 5. November 2001 Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31–70) 340–3016 Menegaki, F

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlic

n, die zur selben Patentfamilie gehören

In: \_\_itionales Aktenzeichen PCT/EP 01/07981

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung	
WO 0014071	A	16-03-2000	DE AU BR WO	19840322 A1 5970399 A 9913383 A 0014071 A2	09-03-2000 27-03-2000 22-05-2001 16-03-2000
WO 0009482	A	24-02-2000	AU BR CN WO EP	5513899 A 9912962 A 1311774 T 0009482 A1 1105375 A1	06-03-2000 08-05-2001 05-09-2001 24-02-2000 13-06-2001
WO 9909013	A	25-02-1999	DE AU BR CN WO EP HU JP PL US	19735224 A1 9069098 A 9811168 A 1267285 T 9909013 A1 1003725 A1 0004463 A2 2001515068 T 338735 A1 6147104 A	18-02-1999 08-03-1999 25-07-2000 20-09-2000 25-02-1999 31-05-2000 28-05-2001 18-09-2001 20-11-2000 14-11-2000